



HAL
open science

Développement d'un modèle numérique de prédiction des émissions d'oxydes d'azote pour la simulation aux grandes échelles de chambres de combustion aéronautiques

François Pecquery

► To cite this version:

François Pecquery. Développement d'un modèle numérique de prédiction des émissions d'oxydes d'azote pour la simulation aux grandes échelles de chambres de combustion aéronautiques. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. INSA de Rouen, 2013. Français. NNT : 2013ISAM0029 . tel-00949132

HAL Id: tel-00949132

<https://theses.hal.science/tel-00949132v1>

Submitted on 19 Feb 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée par

François Pecquery

pour l'obtention du grade de

Docteur de l'Institut National des Sciences Appliquées de Rouen

Discipline : Énergétique
Spécialité : Mécanique des Fluides
Formation doctorale : Sciences Physiques, Mathématiques
et de l'Information pour l'Ingénieur
Laboratoire d'accueil : UMR-CNRS-6614-CORIA

Développement d'un modèle numérique de prédiction des émissions d'oxydes d'azote pour la simulation aux grandes échelles de chambres de combustion aéronautiques

soutenue le 6 juin 2013

Membres du jury :

Rapporteurs :

Bénédicte Cuenot
Benoit Fiorina

Chercheur Senior, CERFACS, Toulouse
Maître de Conférence, EM2C, Ecole Centrale Paris

Examineurs :

Denis Veynante
Frédéric Grisch
Olivier Colin

Directeur de recherches CNRS, EM2C, Ecole Centrale Paris
Professeur des Universités, CORIA, INSA de Rouen
Ingénieur de Recherche, CNRS, IFP Energie nouvelles

Membre invité :

Anthony Roux

Docteur, Ingénieur de recherche, Turboméca Pau

Coencadrant et directeur de thèse :

Vincent Moureau
Luc Vervisch

Chargé de recherches CNRS, CORIA, INSA de Rouen
Professeur des Universités, CORIA, INSA de Rouen

Résumé : Développement d'un modèle numérique de prédiction des émissions d'oxydes d'azote pour la simulation aux grandes échelles de chambres de combustion aéronautiques.

Cette thèse est consacrée à l'amélioration des capacités de prédiction des émissions d'oxydes d'azote (NO et NO₂) des foyers de combustion aéronautiques. Les travaux, exclusivement numériques, consistent d'abord dans une étude de la cinétique chimique responsable des émissions polluantes. Cette étude conduit à l'écriture d'un modèle, nommé NOMANI (pour Nitrogen Oxide emission model with one-dimensional MANIfold), basé sur l'approche PCM-FPI (pour Presumed Conditional Moments - Flame Prolongation of ILDM) avec une variable de progrès additionnelle afin calculer l'avancement de la chimie azoté une fois la chimie carbonée à l'équilibre. Différentes validations sur des configurations laminaires simples puis des flammes de laboratoire de Sandia sont présentées. Les résultats en terme de structure de flamme et d'émission de monoxyde d'azote sont confrontés aux mesures expérimentales. Le dernier volet de ces travaux, disponible uniquement dans la version confidentielle du manuscrit, consiste dans le développement d'un modèle de prédiction de polluants associé au modèle TF-LES (pour Thickening Flame for Large Eddy Simulation). Le modèle développé est ensuite appliqué à des calculs d'une chambre de combustion aéronautique.

Mots-clés : Modélisation de la combustion turbulente - Simulation aux grandes échelles - Chimie tabulée - Prédiction des NO_x - Flammes non-prémélangées

Abstract : Development of a numerical model to predict emission of nitric oxides in aeronautical combustion chambers.

This thesis is focused on the prediction capabilities of nitrogen oxides (NO and NO₂) for numerical tools applied to aeronautical combustion chambers. The modeling work is based on a study of the chemical kinetic that produced the pollutant emissions. This study leads to a model, called NOMANI (Nitrogen Oxide emission model with one-dimensional MANIfold), based on PCM-FPI (Presumed Conditional Moments - Flame Prolongation of ILDM) with an additional progress variable to compute the NO evolution once the carbon chemistry is at the equilibrium. Several benchmarks and test-cases (laminar and turbulent flames) are gathered in this study : Sandia flame have been computed and satisfactory comparisons with measurements are obtained. The last part of this work, only available in the confidential version of the manuscript, is the development of a model to predict pollutant associated with the model TF-LES (for Thickening Flame for Large Eddy Simulation). This model is then applied to computations of a aeronautical combustion chambers.

Keywords : Turbulent combustion modeling - Large-Eddy Simulation - Tabulated chemistry - NO_x prediction - Non-premixed flames

Table des matières

1	Introduction	13
1.1	Généralités	13
1.2	Contexte environnemental	13
1.3	Contexte industriel	14
1.3.1	Fonctionnement général d'un moteur d'hélicoptère	14
1.3.2	La tenue thermique d'une chambre de combustion	16
1.4	Contexte scientifique	18
1.5	Objectif de la thèse et plan du manuscrit	18
2	Les équations de l'aérothermochimie	20
2.1	Introduction	20
2.2	Propriétés thermodynamiques d'un mélange	21
2.2.1	Description de la composition d'un mélange	21
2.2.2	La loi des gaz parfaits	22
2.2.2.1	Détermination de l'enthalpie et de l'énergie interne	22
2.3	Ecriture des équations bilans	23
2.3.1	La conservation de la masse	23
2.3.2	La conservation de la quantité de mouvement	23
2.3.3	Le transport des espèces chimiques	23
2.3.4	La conservation de l'énergie	24
2.4	La modélisation des phénomènes de transport	25
2.4.1	Modèle de transport complexe	25
2.4.2	Modèle simplifié, appelé modèle à nombre de Lewis unitaire	27
2.5	L'évaluation des termes sources chimiques	28
2.6	Les équations sous l'hypothèse low-Mach	30
2.7	Les équations étendues au formalisme LES	31
2.7.1	La turbulence	31
2.7.2	DNS, RANS et LES	33
2.7.3	Etablissement des équations de la LES	34
2.7.3.1	La fermeture du tenseur de contrainte de sous-maille	37
2.7.3.2	La fermeture du transport turbulent des espèces et de l'équation d'énergie	37
2.7.4	Problématique liée à la combustion turbulente	38

3	La modélisation de la combustion	40
3.1	Introduction	40
3.1.1	Les différents régimes de combustion	41
3.1.1.1	Les réacteurs parfaitement pré-mélangés ou Perfectly Stirred Reactor (PSR)	41
3.1.1.2	Les flammes de pré-mélange	41
3.1.1.3	Les flammes de diffusion	43
3.1.2	Equilibre thermodynamique et fraction de mélange	45
3.1.3	L'interaction combustion/turbulence	45
3.2	Les méthodes de réduction des cinétiques chimiques	47
3.2.1	Réduction de type chimique	47
3.2.1.1	Etude des flux atomiques	47
3.2.1.2	L'Approximation de l'Etat Quasi-Stationnaire : AEQS	49
3.2.1.3	L'Approximation Equilibre Partiel : AEP	49
3.2.2	Réduction de type mathématique	50
3.2.2.1	Repro-modeling	50
3.2.2.2	Intrinsic Low-Dimensional Manifold : ILDM	50
3.2.2.3	La tabulation de la chimie	54
3.3	Les modèles de combustion turbulente	56
3.3.1	Modèle de flamme épaissie	56
3.3.2	PCM (Presumed Conditional Moment)	57
4	La modélisation de la formation du monoxyde d'azote	62
4.1	Introduction	62
4.1.1	Etude phénoménologique de la formation du NO	63
4.1.1.1	Le NO du front de flamme (FF)	63
4.1.1.2	Le NO _x des gaz brûlés (GB)	64
4.1.2	Etat de l'art de la modélisation des émissions de NO _x	65
4.1.3	Conclusion	70
4.2	Etude de la chimie azotée dans un régime de dilution	71
4.2.1	Présentation du problème canonique	71
4.2.2	Influence de la composition initiale	74
4.2.3	Etude des effets transitoires	76
4.2.4	Conclusion intermédiaire	79
4.3	Etude du système chimique dans le formalisme ILDM	82
4.3.1	Mise en évidence d'un attracteur dans les GB	82
4.3.2	Détermination de la variable de progrès	85
4.3.3	Relaxation de la composition sur l'attracteur	85
4.3.4	Le post-traitement des espèces dans les gaz brûlés en régime de dilution	87
4.4	Conclusion sur l'étude de la chimie azotée	89
4.5	Le modèle NOMANI : Nitrogen Oxide emission model with one-dimensional MANifold	90
4.5.1	Validation sur des flammes 1D	92
4.5.2	Ecriture du modèle dans un contexte LES	94
4.5.2.1	Traitement de la fonction d'Heaviside	95

4.5.2.2	Expression du terme $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}$	96
5	Validation du modèle, application à la flamme de Sandia D	100
5.1	Configuration expérimentale	100
5.2	Paramètres de calcul	102
5.2.1	Calculs préliminaires	102
5.2.2	Caractéristiques des maillages	104
5.2.3	Paramètres de tabulation	105
5.2.3.1	Modèle complexe	105
5.2.3.2	Modèle aux nombres de Lewis unitaires	106
5.2.3.3	Caractéristiques des tables chimiques	107
5.3	Résultats	109
5.3.1	Etude des champs moyens	109
5.3.2	Impact du schéma cinétique	115
5.4	Etude topologique de la flamme	117
5.4.1	Etude du régime de combustion	117
5.4.2	Mise en évidence d'une dissymétrie de l'écoulement	119
5.4.3	Etude des émissions de monoxyde d'azote	121
5.5	Conclusion	122
6	Industrialisation du modèle	124
7	Conclusion	126
7.1	Conclusion et perspective	126
7.2	Perspectives	127
A	Optimisation de la table chimique	130
	Liste des figures	135
	Liste des tableaux	140
	Bibliographie	143

Nomenclature

Lettres romaines

Symbole	Signification	Unité
a	Vitesse du son	$m.s^{-1}$
c	Avancement normalisé de la réaction	—
C_p	Capacité calorifique massique à pression constante	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
C_v	Capacité calorifique massique à volume constant	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
C_s	Constante du modèle de Smagorinsky	—
C_w	Constante du modèle WALE	—
\mathcal{D}	Coefficient de diffusion moléculaire	$m^2.s^{-1}$
D	Diamètre	m
\mathcal{E}	Coefficient d'épaississement	—
\mathcal{F}	Coefficient d'efficacité	—
k	Nombre d'onde	s^{-1}
k_b	Constante de Boltzmann	$J.K^{-1}$
l_t	Échelle intégrale	m
L	Échelle de longueur caractéristique	m
N_s	Nombre d'espèces chimiques dans le mélange gazeux	—
\mathcal{P}	PDF générique	—
P	Pression	Pa
r	Abscisse radiale	m
\mathcal{R}	Constante molaire des gaz parfaits	$J.mol^{-1}.K^{-1}$
R	Rayon	m
S	Facteur de ségrégation	—
S_L	Vitesse de flamme laminaire	$m.s^{-1}$
S_{ij}	Tenseur des déformations	s^{-1}
T	Température	K
t	Temps	s
\mathbf{u}	Vecteur vitesse	$m.s^{-1}$
u_i	i-ème composante du vecteur vitesse	$m.s^{-1}$
V	Volume du système	m^3
W	Masse molaire	$kg.mol^{-1}$
x	Abscisse axiale	m
X	Fraction molaire	—
Y	Fraction massique	—
Y_c	Variable d'avancement de la réaction	—

Z	Fraction de mélange	—
-----	---------------------	---

Lettres grecques

Symbole	Signification	Unité
γ	Rapport des capacités calorifiques	—
δ	Épaisseur caractéristique	m
Δ	Échelle du filtre	m
ϵ	Taux de dissipation de l'énergie cinétique	$m^2.s^{-3}$
η_k	Échelle de Kolmogorov	m
λ	Coefficient de conductivité thermique	$W.m^{-1}.K^{-1}$
μ	Coefficient de viscosité dynamique	$kg.m^{-1}.s^{-1}$
ν	Coefficient de viscosité cinématique	$m^2.s^{-1}$
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-3}$
σ	Constante de Stefan-Boltzmann	$W.m^{-2}.K^{-4}$
σ_{ij}	Tenseur des efforts visqueux	$kg.m^{-1}.s^{-2}$
τ_c	Temps caractéristique de la chimie	s
τ_k	Temps caractéristique des petites structures turbulentes	s
τ_t	Temps caractéristique des grandes structures turbulentes	s
φ	Variable thermodynamique générique	selon variable
ϕ	Richesse	—
χ	Taux de dissipation scalaire	s^{-1}
$\dot{\omega}_k$	Terme source d'espèce	s^{-1}
$\dot{\omega}_T$	Terme source d'énergie	$J.kg^{-1}.s^{-1}$

Indices et exposants

Symbole	Signification
0	Relatif à l'état initial
<i>ad</i>	Adiabatique
<i>b</i>	Burnt
<i>coflow</i>	Relatif à l'écoulement de type coflow
<i>eq</i>	Équilibre
<i>F</i>	Relatif au carburant (fuel)
<i>jet</i>	Relatif au jet fluide central
<i>k</i>	Relatif à l'espèce k
<i>l</i>	Côté pauvre (ou lean)
<i>max</i>	Maximum
<i>min</i>	Minimum
<i>O</i>	Relatif à l'oxydant
<i>pilote</i>	Relatif au jet pilote
<i>r</i>	Côté riche
<i>st</i>	Stœchiométrie

t	Turbulent
u	Unburnt

Nombres sans dimension

Symbole	Signification
Da	Nombre de Damköhler
Le	Nombre de Lewis
Pr	Nombre de Prandtl
Re	Nombre de Reynolds
Sc	Nombre de Schmidt

Opérateurs

Symbole	Signification
$\bar{\varphi}$	Filtre, moyenne de Reynolds
$\tilde{\varphi}$	Moyenne de Favre
$\langle \varphi \rangle$	Moyenne statistique temporelle

Acronymes

Symbole	Signification
ACARE	Advisory Council for Aeronautics Research in Europe
CERFACS	Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique
CFD	Computational Fluid Dynamics
CFL	Courant Friedrichs Lewy
CIFRE	Convention Industrielle de Formation par la REcherche
CMC	Conditional Moment Closure
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
CORIA	COMplexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie
CPU	Central Processing Unit
DNS	Direct Numerical Simulation
EM2C	Énergétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion
FGM	Flamelet Generated Manifold
FPI	Flame Prolongation of ILDM
IATA	International Air Transport Association
IFP	Institut Français du Pétrole
ILDM	Intrinsic Low Dimensional Manifold
INSA	Institut National des Sciences Appliquées
LDV	Laser Doppler Velocimetry
LES	Large-Eddy Simulation
LIF	Laser Induced Fluorescence
PCM	Presumed Conditional Moments

PDF	Probability Density Function
RANS	Reynolds Averaged Navier Stokes
RMS	Root Mean Square

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1 Généralités	13
1.2 Contexte environnemental	13
1.3 Contexte industriel	14
1.3.1 Fonctionnement général d'un moteur d'hélicoptère	14
1.3.2 La tenue thermique d'une chambre de combustion	16
1.4 Contexte scientifique	18
1.5 Objectif de la thèse et plan du manuscrit	18

1.1 Généralités

Cette thèse CIFRE, débutée en 2010, résulte d'une collaboration entre un acteur industriel, Turbomeca, et un laboratoire de recherche du CNRS : l'UMR-6614-CORIA. Elle porte sur la combustion des chambres de combustion aéronautiques et plus particulièrement sur les émissions polluantes. La réduction des émissions polluantes est un des principaux enjeux auxquels doit faire face l'industrie aéronautique. L'essentiel de cette thèse s'est fait dans les locaux de l'INSA de Rouen. Différents séjours, d'une durée cumulée de trois mois, ont été effectués au CERFACS afin d'assurer l'industrialisation des travaux effectués durant les deux premières années de thèse.

1.2 Contexte environnemental

Depuis le premier vol commercial régulier reliant Paris à Londres, le 8 février 1919, le trafic aérien civil n'a cessé de s'intensifier. En 2013, année de rédaction de ce manuscrit, on dénombre 80 000 avions par jour qui prennent leurs vols pour une distance moyenne de 2 400 Km par trajet. La figure 1.1 est une illustration du trafic aérien instantané. La rapidité de ce moyen de locomotion est la cause de sa notoriété croissante. C'est dans ce contexte que les émissions polluantes liées à l'aéronautique civile ne cessent d'augmenter. Selon l'organisation de l'aviation civile internationale (OACI), le transport aérien représente 13% des émissions de CO₂ liées aux activités de transport. Mais son impact sur le changement climatique est sans doute deux à

trois fois plus élevé. En altitude, les oxydes d'azote (NO_x) rejetés par les réacteurs provoquent la formation d'ozone, autre gaz à effet de serre. De plus, les traînées de condensation des avions contribueraient également à l'effet de serre. Par rapport à une voiture à essence, les émissions de carbone d'un avion moyen ou long-courrier par passager et par kilomètre sont supérieures de 50%. Les recherches récentes en matière d'étude du climat font état d'un réchauffement glo-



FIGURE 1.1: Représentation du trafic aérien instantané en 2012 (source IATA).

bal attribué (du moins en partie) aux émissions de gaz à effet de serre. La figure 1.2 illustre l'évolution des émissions de CO_2 durant les trois derniers siècles (source Carbon Dioxide Information Analysis Center [1]). L'émergence d'une prise de conscience idéologique et politique a poussé les pouvoirs publics à limiter ces émissions. L'ACARE, le conseil consultatif pour la recherche aéronautique en Europe, a mis en place un plan ambitieux lancé en 2008. Ce projet prévoit d'ici 2020 :

- une réduction de la consommation de kérosène et des émissions de CO_2 de 50%,
- une réduction des émissions d'oxyde d'azote de 80%,
- une réduction du bruit perçu de 50%.

Outre le durcissement des normes environnementales, on peut noter l'émergence de projets comme le projet "Clean sky". Cette initiative consiste dans un partenariat entre l'Union Européenne et différents acteurs privés. Cependant, si de nombreux efforts ont été fournis on constate que le succès d'un tel challenge n'est possible qu'en maintenant un effort soutenu dans le secteur de la recherche et du développement. C'est dans ce contexte que s'inscrit cette thèse. Elle a pour but l'étude de la production des NO_x dans la chambre de combustion. La chambre de combustion est l'organe dans lequel se fait la combustion du kérosène mais aussi la production des polluants, cette thèse est donc axée sur le coeur du problème.

1.3 Contexte industriel

1.3.1 Fonctionnement général d'un moteur d'hélicoptère

Les moteurs utilisés en aéronautique fonctionnent tous sur le même principe de base, à savoir une transformation de l'énergie potentielle chimique contenue dans les liaisons des molécules de fuel en énergie mécanique. Néanmoins, ces moteurs peuvent se distinguer en trois catégories :

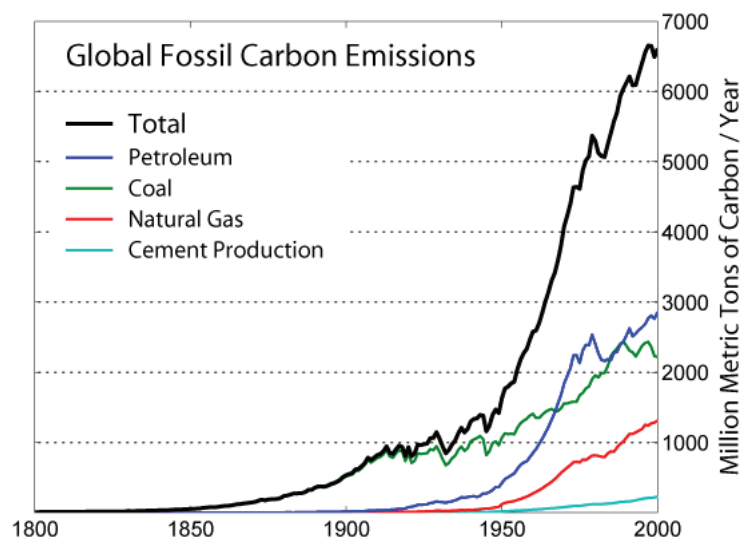


FIGURE 1.2: Evolution au cours du temps des émissions de CO₂ liées au carbone fossile (source CDIAC).

- les turboréacteurs : appareils à réaction directe, où l'énergie cinétique des gaz sert uniquement à la propulsion (moteur d'avion à propulsion),
- les turbopropulseurs : la puissance est récupérée sur un arbre entraînant directement une hélice (moteur d'avion à hélice),
- les turbomoteurs : la puissance est récupérée sur un arbre entraînant un récepteur quelconque (moteur d'hélicoptère).

Turbomeca est l'entreprise leader mondial en matière de conception et de développement de turbomoteurs et de turboréacteurs, c'est la raison pour laquelle nous exposerons brièvement le fonctionnement de base de ces moteurs. Comme il a été expliqué, l'objectif d'un moteur aéronautique est de transformer l'énergie potentielle chimique contenue dans les liaisons des molécules de fuel en énergie mécanique. Cette conversion se fait en brûlant le fuel dans la chambre de combustion et en récupérant les forces de poussées créées par la dilatation des gaz chauds au niveau de la turbine haute pression. L'efficacité de ce procédé est accentuée quand l'ensemble du système est mis sous pression, *via* le compresseur. Ce bref descriptif d'une chambre de combustion permet de mettre en avant les trois composés principaux d'un moteur d'hélicoptère : le compresseur, la chambre de combustion et la turbine haute pression. Chaque élément joue un rôle clé dans le fonctionnement du moteur, et leur complémentarité est essentielle pour assurer de bonnes performances. Lors de sa progression dans les différents organes, le fluide suit les étapes d'un cycle thermodynamique : admission, compression, combustion, détente et éjection. C'est ainsi que l'écoulement de l'air s'opère de manière continue le long du turboréacteur et que contrairement aux moteurs à combustion interne, le foyer aéronautique est le siège d'une combustion continue, dont la puissance est modulée en fonction du besoin. Nous pouvons préciser que différents types de chambre peuvent être utilisés, mais le plus souvent, ce sont des chambres de type annulaire. Un des buts du motoriste est d'optimiser deux points clés, la consommation et la puissance, tout en garantissant une sûreté de fonctionnement, une durée de vie et en maintenant les émissions polluantes faibles. Ceci passe par la compréhension des phénomènes complexes entrant en jeu dans les différents ensembles. Cependant, la durée

de vie d'un moteur d'hélicoptère est directement fonction de la tenue thermique des matériaux. De nombreuses techniques ont été développées pour protéger les parois du tube à flamme ainsi que les pales de la turbine des poches de gaz brûlés trop chaudes. Cette contrainte conditionne en grande partie le design des chambres de combustion.

1.3.2 La tenue thermique d'une chambre de combustion

La chambre de combustion est soumise à de nombreuses contraintes thermiques et mécaniques. De plus, l'amélioration du rendement thermodynamique du moteur passe par l'augmentation du taux de compression et de la température d'entrée turbine, donc par l'augmentation de la température des gaz dans la chambre de combustion. Afin de résister aux contraintes thermiques, il est nécessaire de refroidir les parois. Pour cela plusieurs systèmes existent, la majorité d'entre eux font intervenir des flux de dilution. En effet, dans la chambre de combustion, l'air comprimé qui sort du compresseur centrifuge est divisé en deux flux principaux : un flux primaire mélangé au carburant destiné à la combustion proprement dite, et un flux secondaire (ou de dilution) chargé du refroidissement des gaz brûlés. Une méthode très efficace est alors l'injection de ce flux de dilution par multiperforation. Pour cela de petites perforations de diamètre inférieur au millimètre sont percées dans les zones de paroi à protéger. Une partie de l'air provenant du compresseur passe dans ces perforations. Cet air est plus froid que l'écoulement interne de la chambre de combustion. Il crée un mince film frais sur la paroi pour la protéger. Il existe plusieurs façons d'utiliser les multiperforations. Une multiperforation désigne une zone où la paroi est percée de plusieurs rangées de trous en quinconce pour protéger la paroi localement par effusion d'air. Ce procédé peut être visualisé sur la figure 1.3.

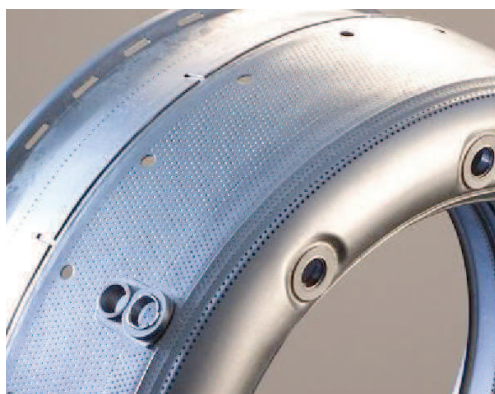


FIGURE 1.3: Multiperforation pariétales sur viroles internes et externes.

La figure 1.4 illustre un autre procédé chargé du refroidissement des parois du tube à flamme. Ce système dénommé Machined cooling ring crée un film d'air frais le long de la paroi et permet de refroidir cette dernière en aval du film.

Le dernier procédé inventé par les ingénieurs n'a pas pour but de protéger les parois du tube à flamme mais d'homogénéiser la température des gaz brûlés pour protéger les pales de la turbine haute pression des températures trop élevées. Ce procédé consiste dans l'injection d'air frais au coeur de la chambre de combustion. Cette injection se fait *via* les trous de dilution qui permettent de distinguer la zone primaire (zone qui est le siège de la combustion) à la zone de dilution (zone qui convecte les gaz brûlés jusqu'à la turbine haute pression).

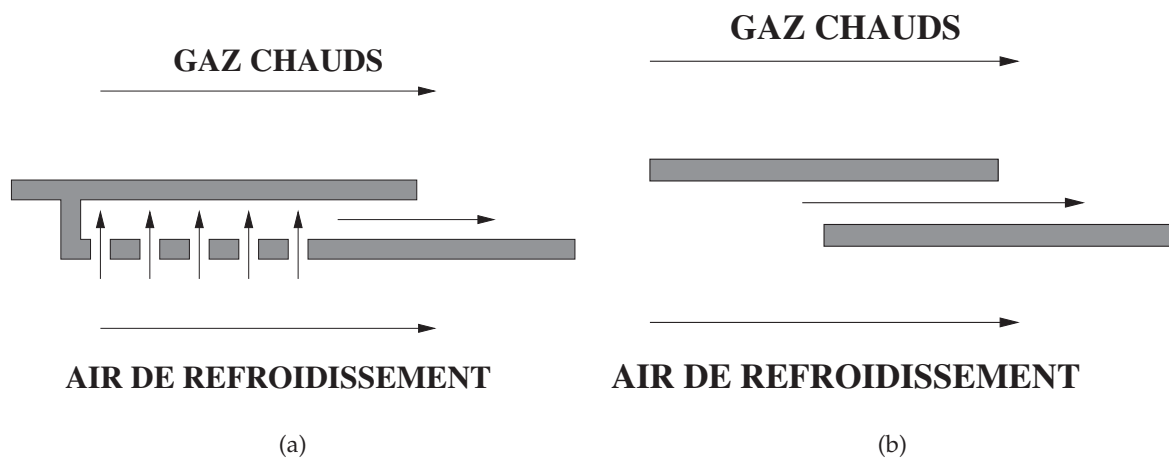


FIGURE 1.4: Exemples de systèmes de refroidissement. a) Refroidissement par impact et film. b) Refroidissement par film.

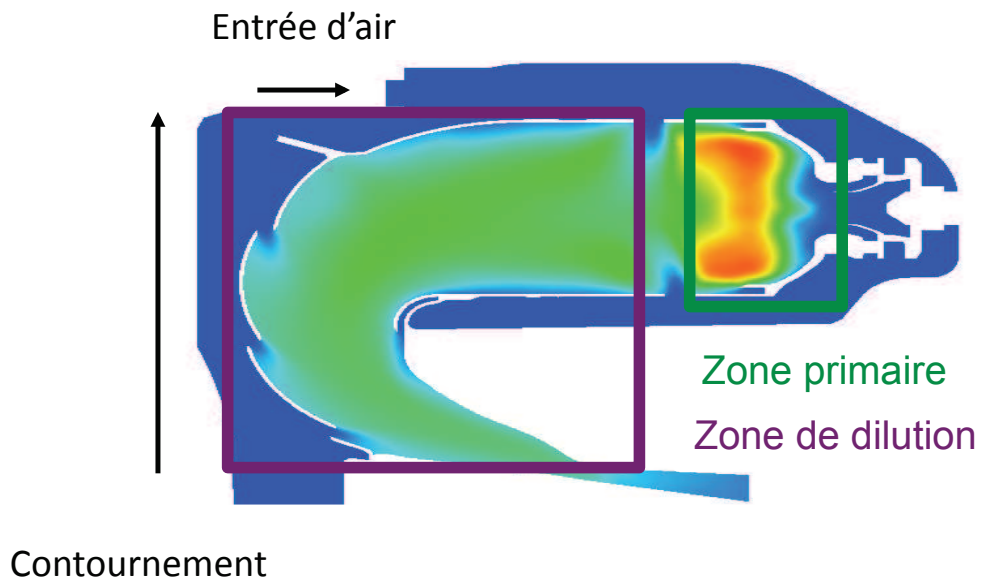


FIGURE 1.5: Evolution de la température moyenne pour un calcul de chambre de combustion (Turbomeca). Ces calculs ont été effectués par G. Boudier [15].

Les chambres de combustion aéronautiques sont des problèmes multiphysiques avec de nombreuses contraintes et la réduction des émissions de NO_x vient s'ajouter à ces contraintes. L'amélioration des performances d'un tel moteur n'est possible qu'à la condition d'entretenir un fort niveau d'investissement en recherche et développement. C'est ainsi que Turbomeca participe aux avancées de la modélisation de la combustion turbulente notamment dans le domaine de la simulation aux grandes échelles (LES). C'est dans ce contexte industriel que s'inscrivent ces travaux de thèse.

1.4 Contexte scientifique

Les puissances de calculs n'ont eu de cesse d'augmenter rendant possible des calculs scientifiques de plus en plus complexes. Cependant, ces moyens ne permettent pas de résoudre les équations de la mécanique des fluides couplées à celles de la cinétique de la combustion sans approximation. Néanmoins, des travaux datant de 2000 proposent une approche prometteuse quant à la prédiction des émissions de polluants. Cette méthode, appelée FPI ou encore FGM, consiste à tabuler *a priori* la cinétique chimique. Les propriétés thermodynamiques sont généralement tabulées en fonction d'une variable de progrès et d'une variable représentative de la richesse du mélange. Dès lors, seul le transport de ces deux variables est nécessaire pour connaître les propriétés dues à la combustion et celles-ci tiennent compte des effets de cinétique complexe considérés durant la tabulation de la chimie. Cette modélisation est une approche permettant d'avoir accès à l'évolution d'espèces minoritaires comme les NO_x . C'est pour cette raison que cette approche constitue la colonne vertébrale des travaux présentés dans cette thèse.

1.5 Objectif de la thèse et plan du manuscrit

L'ambition donnée à cette thèse est le développement d'un modèle numérique précis dédié à la prédiction des émissions d'oxydes d'azote dans les conditions d'un moteur aéronautique. Ce modèle doit permettre à terme aux ingénieurs d'imaginer un design de moteur plus propre.

Ce premier chapitre a permis d'introduire le contexte environnemental, industriel et scientifique de ces travaux. L'axe de cette étude est exclusivement numérique. C'est la raison pour laquelle le chapitre deux est consacré à la description des équations et des modèles nécessaires à la résolution des équations de la mécanique des fluides. Le chapitre trois présente les différents régimes de combustion qui peuvent être calculés en prenant en compte une cinétique chimique complexe. Ce dernier se poursuit en établissant un état de l'art de la modélisation de la combustion. Le chapitre quatre est consacré à l'étude des émissions de NO_x . Dans un premier temps, il décrit les processus chimiques menant à leurs formations puis, il dresse la liste des modèles disponibles dans la littérature à la date de rédaction de ce manuscrit. Ce chapitre s'achève sur l'écriture du modèle développé pendant cette thèse. Le chapitre cinq est dédié à la validation de ce modèle dans un contexte turbulent, ceci est fait au travers d'un calcul hautement résolu d'une flamme de laboratoire. Ensuite, le chapitre six présente les travaux qui ont été réalisés durant la dernière année de thèse. Ceux-ci ont consisté en l'adaptation du modèle, initialement pensé dans un contexte de chimie tabulée, à une cinétique analytique. Le dernier chapitre fait

office de conclusion et offre quelques perspectives quant aux futurs développements possibles du modèle.

Chapitre 2

Les équations de l'aérothermochimie

Sommaire

2.1	Introduction	20
2.2	Propriétés thermodynamiques d'un mélange	21
2.2.1	Description de la composition d'un mélange	21
2.2.2	La loi des gaz parfaits	22
2.3	Ecriture des équations bilans	23
2.3.1	La conservation de la masse	23
2.3.2	La conservation de la quantité de mouvement	23
2.3.3	Le transport des espèces chimiques	23
2.3.4	La conservation de l'énergie	24
2.4	La modélisation des phénomènes de transport	25
2.4.1	Modèle de transport complexe	25
2.4.2	Modèle simplifié, appelé modèle à nombre de Lewis unitaire	27
2.5	L'évaluation des termes sources chimiques	28
2.6	Les équations sous l'hypothèse low-Mach	30
2.7	Les équations étendues au formalisme LES	31
2.7.1	La turbulence	31
2.7.2	DNS, RANS et LES	33
2.7.3	Etablissement des équations de la LES	34
2.7.4	Problématique liée à la combustion turbulente	38

2.1 Introduction

Le chapitre précédent avait pour but de présenter les enjeux de la combustion et de son couplage à la mécanique des fluides. La CFD (Computational Fluid Mechanics) consiste en la résolution numérique des équations non-linéaires de la mécanique des fluides. La résolution numérique de ces équations sans autre approximation que celle inhérente à la discrétisation est appelée DNS (Direct Numerical Simulation). Cette approche est la plus fiable et permet d'avoir accès à toute la dynamique de l'écoulement turbulent jusqu'à ses structures les plus fines. Un calcul DNS implique la résolution d'un grand nombre d'équations :

- une équation pour la densité ρ ,
- les équations de Navier-Stokes qui sont au nombre de trois,
- une équation pour la pression ou l'énergie,
- ainsi qu'une équation par espèce transportée.

On parle des équations de l'aérothermochimie lorsque les propriétés thermodynamiques de l'écoulement ne sont pas uniformes en espace et/ou constantes dans le temps et que l'on a des réactions chimiques, ce qui est le cas des écoulements réactifs. Dans ce cas de figure, la thermodynamique est couplée aux équations de la mécanique des fluides *via* la densité. Dans un premier temps, ce chapitre s'attache à présenter les équations de la thermodynamique qui permettent de définir les propriétés d'un mélange. Dans un deuxième temps, les équations d'une DNS réactive compressible sont abordées. Ces équations sont ensuite étendues à l'hypothèse de faible nombre de Mach. Finalement les équations de l'aérothermochimie filtrées sont présentées pour satisfaire à la modélisation des grandes échelles, appelée LES (Large Eddy Simulation). Il est important de noter que l'ensemble de ces travaux s'appuient sur l'hypothèse des gaz parfaits.

2.2 Propriétés thermodynamiques d'un mélange

2.2.1 Description de la composition d'un mélange

La densité ρ d'un volume de contrôle V contenant la masse m est obtenue par la relation

$$\rho = \frac{m}{V}. \quad (2.1)$$

La masse molaire est donnée par le ratio entre la masse et le nombre de moles n

$$W = \frac{m}{n}. \quad (2.2)$$

La composition du mélange est déterminée au travers de ses fractions massiques Y_k et molaires X_k pour $k=1$ à N , où N est le nombre d'espèces du mélange. Les fractions massiques et molaires sont obtenues suivant les deux relations

$$Y_k = \frac{m_k}{m} \quad (2.3)$$

et

$$X_k = \frac{n_k}{n}, \quad (2.4)$$

où m_k est la masse et n_k le nombre de moles de l'espèce k dans le volume. Chacune des sommes des fractions molaires et des fractions massiques doit être égale à 1, comme l'indiquent les équations 2.5 et 2.6.

$$\sum_{k=1}^N Y_k = 1 \quad (2.5)$$

$$\sum_{k=1}^N X_k = 1 \quad (2.6)$$

La masse molaire d'un mélange peut être écrite soit en fonction des fractions molaires 2.7, soit en fonction des fractions massiques 2.8

$$W = \sum_{k=1}^N X_k W_k \quad (2.7)$$

$$\frac{1}{\bar{W}} = \sum_{k=1}^N \frac{Y_k}{W_k} \quad (2.8)$$

Les équations 2.7 et 2.8 font intervenir W_k , la masse molaire de l'espèce k . Une autre grandeur importante est la concentration molaire, elle est calculée suivant la relation suivante

$$[X_k] = \rho \frac{Y_k}{W_k} = \rho \frac{X_k}{\bar{W}}. \quad (2.9)$$

Le terme source associé à une espèce k est noté $\dot{\omega}_k$, il correspond au terme source appliqué à la fraction massique Y_k et est exprimé en s^{-1} .

2.2.2 La loi des gaz parfaits

Selon l'hypothèse retenue pour ces travaux, la pression et la température suivent la loi des gaz parfaits

$$P = \rho r T, \text{ avec } r = \frac{\mathcal{R}}{\bar{W}} \quad (2.10)$$

où P est la pression, T la température et $\mathcal{R} = 8.314 J.K^{-1}.mol^{-1}$ est la constante des gaz parfaits.

2.2.2.1 Détermination de l'enthalpie et de l'énergie interne

L'enthalpie et l'énergie associées à une espèce sont définies à partir d'une température de référence T_0 . L'enthalpie H_k associée à une espèce k se compose de l'enthalpie de formation $h_{f,k}^0$ à la température de référence $T = T_0$ et de l'enthalpie sensible $H_{s,k}$.

$$H_k = H_{s,k} + \Delta H_{f,k}^0 = \int_{T_0}^T C_{p,k}(T') dT' + \Delta H_{f,k}^0 \quad (2.11)$$

Dans l'équation 2.11, $C_{p,k}$ est la capacité calorifique de l'espèce k à pression constante, on a donc : $C_{p,k} = (\partial H_{s,k} / \partial T)_P$. L'expression de l'énergie interne associée à une espèce k peut également se décomposer en une énergie sensible et une énergie de formation

$$e_k = e_{s,k} + \Delta H_{f,k}^0 = \left(\int_{T_0}^T C_{v,k}(T') dT' - \frac{RT_0}{W_k} \right) + \Delta H_{f,k}^0, \quad (2.12)$$

où $C_{v,k} = (\partial e_{s,k} / \partial T)_V$ est la capacité calorifique à volume constant de l'espèce k et $e_{s,k}$ est l'énergie sensible associée à l'espèce k . La capacité calorifique à volume constant est reliée à la capacité calorifique à pression constante par la relation suivante

$$C_{p,k} = C_{v,k} + \frac{R}{W_k}. \quad (2.13)$$

L'énergie d'un mélange ainsi que ses capacités calorifiques s'écrivent selon les trois relations

$$C_p = \sum_{k=1}^N C_{p,k} Y_k, \quad (2.14)$$

$$C_v = \sum_{k=1}^N C_{v,k} Y_k, \quad (2.15)$$

$$H = \sum_{k=1}^N h_k Y_k \text{ et} \quad (2.16)$$

$$e = \sum_{k=1}^N e_k Y_k. \quad (2.17)$$

Le rapport des capacités molaires calorifiques est noté γ

$$\gamma = \frac{C_p}{C_v}. \quad (2.18)$$

2.3 Ecriture des équations bilans

2.3.1 La conservation de la masse

L'équation de conservation de la masse s'écrit de la façon suivante

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_i}{\partial x_i} = 0. \quad (2.19)$$

2.3.2 La conservation de la quantité de mouvement

En négligeant les forces volumiques, l'équation de conservation de quantité de mouvement s'écrit

$$\frac{\partial \rho u_j}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_i u_j}{\partial x_i} = -\frac{\partial P}{\partial x_j} + \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_i}, \quad (2.20)$$

où P est la pression statique locale et τ_{ij} désigne le tenseur des contraintes visqueuses défini comme :

$$\tau_{ij} = -\frac{2}{3}\mu \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{ij} + \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right). \quad (2.21)$$

Dans l'équation précédente, μ désigne la viscosité dynamique et δ_{ij} est le tenseur de Kronecker. Le tenseur des contraintes visqueuses peut également s'écrire avec une partie isotrope fonction de la pression et une partie anisotrope σ_{ij} .

$$\sigma_{ij} = \tau_{ij} - P\delta_{ij} \quad (2.22)$$

2.3.3 Le transport des espèces chimiques

L'équation de transport des espèces suit la relation

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial \rho(u_i + V_{k,i})Y_k}{\partial x_i} = \rho \dot{\omega}_k, \quad (2.23)$$

où $V_{k,i}$ est la vitesse de diffusion de la $k^{\text{ème}}$ espèce dans la direction i . L'équation de continuité de la masse nous assure les relations

$$\sum_{k=1}^N V_{k,i} Y_k = 0 \text{ et } \sum_{k=1}^N \dot{\omega}_k = 0. \quad (2.24)$$

$V_{k,i}$ peut être calculée à partir de la formulation multi-composants de la diffusion [141]

$$\frac{\partial X_k}{\partial x_i} = \sum_{j=1}^N \left(\frac{X_k X_j}{D_{kj}} \right) (V_j V_k) + (Y_k - X_k) \frac{1}{P} \left(\frac{\partial P}{\partial x_i} \right), \quad (2.25)$$

où D_{kj} est la diffusion binaire pour les espèces k et j . Cette formulation issue de la cinétique des gaz présente l'avantage d'assurer la conservation de la masse sans aucun facteur de correction. Cependant l'équation 2.25 couple toutes les espèces composant le mélange, ce qui implique l'inversion d'une matrice $N \times N$ (N étant le nombre de composants du mélange). Une simplification proposée par Curtiss et Hirschfelder [29] évite ce surcoût de calcul.

$$V_{k,j} X_k = -D_k \frac{\partial X_k}{\partial x_j} \quad (2.26)$$

Cependant cette équation ne vérifie pas la condition de continuité 2.24 si tous les coefficients D_k ne sont pas constants. L'expression d'une vitesse "diffusive" de correction, notée $V_{c,j}$, est ajoutée afin de pallier à cette lacune :

$$V_{k,j} Y_k = -D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_j} + V_{c,j} Y_k, \quad (2.27)$$

où $V_{c,j}$ suit la relation :

$$V_{c,j} = \sum_{k=1}^N D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_j}. \quad (2.28)$$

En considérant ces hypothèses, l'équation 2.23 s'écrit :

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial \rho (u_i + V_{c,i}) Y_k}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_j} \right) + \rho \dot{\omega}_k. \quad (2.29)$$

2.3.4 La conservation de l'énergie

Selon le premier principe de la thermodynamique, l'énergie totale d'un système isolé se conserve. L'énergie totale est notée e_t et suit l'équation 2.30. On note que l'énergie totale non chimique est notée E .

$$e_t = e + \frac{1}{2} u_i^2 \quad (2.30)$$

$$E = e_s + \frac{1}{2} u_i^2 \quad (2.31)$$

En négligeant les flux radiatifs et à partir de l'équation 2.30, il est possible d'écrire l'équation de conservation de l'énergie totale

$$\frac{\partial \rho e_t}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j e_t) = \frac{\partial q_j}{\partial x_j} - + \frac{\partial}{\partial x_j} (\sigma_{ij} u_i) + \dot{Q} \quad (2.32)$$

et d'en déduire l'équation de transport de l'énergie totale non chimique

$$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u_j E) = \frac{\partial q_j}{\partial x_j} - + \frac{\partial}{\partial x_j} (\sigma_{ij} u_i) + \dot{Q} + \rho \dot{\omega}_T . \quad (2.33)$$

où on introduit le taux de dégagement de chaleur

$$\dot{\omega}_T = - \sum_{k=1}^N \Delta H_{f,k}^0 \dot{\omega}_k . \quad (2.34)$$

$H_{f,k}^0$ est un terme qui est tabulé (voir section 2.5). Le flux de diffusion de chaleur peut être exprimé à l'aide de la loi suivante

$$q_j = \underbrace{\left(\lambda_{th} \frac{\partial T}{\partial x_j} \right)}_{\text{Fourier}} - \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho \sum_{k=1}^N H_{s,k} Y_k V_{k,j} \right)}_{\text{contribution énergétique des flux de diffusion différentiels}} . \quad (2.35)$$

2.4 La modélisation des phénomènes de transport

Les processus de transport moléculaire (la diffusion, la conduction ou encore la viscosité) sont des propriétés dues aux mouvements des particules fluides qui composent le mélange étudié. La diffusion est un processus de transport de masse créé par les gradients de concentrations, tandis que la viscosité peut être considérée comme un transport de quantité de mouvement provoqué par les gradients de vitesse et la conduction de chaleur est un transport de chaleur provoqué par les gradients de température. Ces trois phénomènes de transport font intervenir trois grandeurs présentées précédemment :

- μ
- λ_{th}
- \mathcal{D}_k

Ces trois termes ne sont pas modélisés de la même façon par les solveurs CFD et les solveurs destinés aux calculs avec chimie complexe. Les deux fermetures possibles pour chaque terme sont présentées dans cette section. Il faut également noter que deux autres processus de transport, à savoir l'effet Dufour et l'effet Soret, qui correspondent respectivement au transport de masse dû au gradient de la température et au transport d'énergie dû aux gradients des concentrations sont ici négligés.

2.4.1 Modèle de transport complexe

Le modèle de transport complexe expliqué ici correspond au transport implanté dans le solveur libre Cantera [52]. Il est basé sur la théorie de la cinétique complexe de Hirschfelder [54] aboutie par Bird [12]. Les équations sont présentées sous l'hypothèse que le gaz obéit à la loi des gaz parfaits, les particules sont considérées sphériques et indéformables mais de diamètres variables σ_k . Le lecteur désireux de connaître le développement de ces équations dans le cadre de gaz réel peut s'orienter vers l'ouvrage de Kee [61].

Sous l'hypothèse que le gaz considéré est un gaz parfait, une particule k allant à une vitesse moyenne \bar{v} dessine une trajectoire illustrée sur la figure 2.1. Le volume du cylindre formé par la course de la particule A pendant un instant Δt est donc : $V = \pi \sigma_k^2 \cdot \bar{v} \cdot \Delta t$. La quantité de

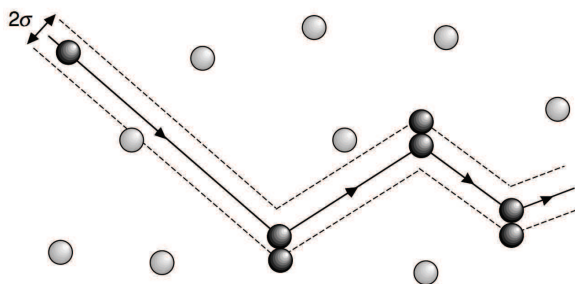


FIGURE 2.1: Illustration schématique de la trajectoire d'une particule k de diamètre σ_k obéissant à l'hypothèse du gaz parfait.

particules dans ce cylindre par unité de temps est égale au nombre de collisions par unité de temps et suit la relation

$$\frac{N}{\Delta t} = \pi \sigma_k^2 \cdot \bar{v} \cdot [k]. \quad (2.36)$$

On introduit le libre parcours moyen l_{coll} , comme étant le rapport entre la distance $\bar{v} \cdot \Delta t$ et le nombre de collisions N

$$l_{coll} = \frac{\bar{v} \cdot \Delta t}{\pi \sigma_k^2 \cdot \bar{v} \cdot [k]} = \frac{1}{\pi \sigma_k^2 \cdot [k]}. \quad (2.37)$$

La **viscosité dynamique** de chaque composant du mélange est considérée comme étant proportionnelle au libre parcours moyen, à la vitesse moléculaire moyenne, la capacité calorifique massique et la densité moléculaire

$$\mu_k = \frac{5}{16} \frac{\sqrt{\pi m_k k T}}{\pi \sigma_k^2}. \quad (2.38)$$

où k est la constante de Boltzman ($k = R/N_a$, N_a étant le nombre d'Avogadro) et m_k la masse de la molécule k . La viscosité du mélange est ensuite calculée à partir de la somme des viscosités selon la formule de Wilke [140]

$$\mu = \sum_k \frac{\mu_k X_k}{\sum_j \Phi_{k,j} X_j} \text{ avec} \quad (2.39)$$

$$\Phi_{k,j} = \frac{\left[1 + \sqrt{\left(\frac{\mu_k}{\mu_j} \sqrt{\frac{M_j}{M_k}} \right)^2} \right]}{\sqrt{8} \sqrt{1 + M_k/M_j}} \quad (2.40)$$

La **conductivité thermique** de chaque composant du mélange est considérée comme étant proportionnelle au libre parcours moyen, à la vitesse moléculaire moyenne, la capacité calorifique massique et la densité moléculaire :

$$\lambda_{th,k} = \frac{25}{32} \frac{\sqrt{\pi m_k k T}}{\pi \sigma_k^2} \cdot C_{v,k}. \quad (2.41)$$

La conductivité thermique du mélange est ensuite calculée selon la formule empirique [87] ($\sim 10\%$ d'erreur) à partir de la totalité des conductivités thermiques des espèces qui composent

le mélange

$$\lambda_{th} = \frac{1}{2} \cdot \left[\sum_i X_i \lambda_{th,i} + \sum_i \left[\frac{X_i}{\lambda_{th,i}} \right]^{-1} \right] \quad (2.42)$$

La **diffusion moléculaire** d'une espèce dans un mélange est calculée à partir des coefficients de diffusion binaires. Le coefficient binaire de diffusion d'une espèce k vis-à-vis d'une espèce m est proportionnelle à la vitesse moyenne et le libre parcours moyen

$$\mathcal{D}_{k,j} = \frac{3}{8} \sqrt{\frac{\pi k T \cdot \frac{m_k \cdot m_j}{m_k + m_j}}{\pi \sigma_{k,j}^2}} \frac{1}{\rho} \quad (2.43)$$

avec

$$\sigma_{k,m} = \frac{\sigma_k + \sigma_j}{2}. \quad (2.44)$$

La diffusion moléculaire d'une espèce k au sein d'un mélange de N espèces est exprimée selon la formule empirique

$$\mathcal{D}_k^M = \frac{1 - Y_k}{\sum_{j \neq k} \frac{X_j}{\mathcal{D}_{k,j}}} \quad (2.45)$$

2.4.2 Modèle simplifié, appelé modèle à nombre de Lewis unitaire

Pour des raisons de coût CPU évidentes, les solveurs CFD supposent les propriétés de transport indépendantes de la composition du mélange. Ces modèles simplistes déterminent la viscosité du mélange à partir de la température, souvent en approximant le mélange comme étant de l'air.

La **viscosité dynamique** peut être déterminée à partir de plusieurs modèles. Dans le cadre de ces travaux, deux modèles ont été utilisés : la loi de Sutherland et la loi puissance. La loi de Sutherland se décline ainsi

$$\mu = \mu_{ref} \frac{T_{ref} + C}{T + C} \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{3/2}. \quad (2.46)$$

La loi puissance suit la formulation suivante

$$\mu = \mu_{ref} \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^b. \quad (2.47)$$

La **conductivité thermique** est estimée à partir d'un nombre de Prandtl :

$$Pr = \frac{\mu C_p}{\lambda_{th}}. \quad (2.48)$$

Le transport lié à la **diffusion moléculaire** d'une espèce k n'est pas uniquement fermé par la modélisation de \mathcal{D}_k . Deux hypothèses supplémentaires sont faites afin de résoudre l'équation 2.29. La première hypothèse consiste à négliger les gradients de W , ce qui se traduit par

$$\frac{\partial Y_k}{\partial x_i} = \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_i}. \quad (2.49)$$

Et si tous les coefficients de diffusion \mathcal{D}_k sont supposés égaux ($\mathcal{D}_k = \mathcal{D}$) alors l'équation 2.28 devient

$$V_{k,j} Y_k = -\mathcal{D} \frac{\partial Y_k}{\partial x_j}. \quad (2.50)$$

La deuxième hypothèse consiste à déterminer le coefficient de diffusion \mathcal{D} à partir d'un nombre de Schmidt fixé S_{c_k}

$$S_c = \frac{\mu}{\rho \mathcal{D}}. \quad (2.51)$$

2.5 L'évaluation des termes sources chimiques

Cette section s'attache à décrire l'évaluation des termes sources intervenant dans les équations de transport des fractions massiques. Pour ce faire, considérons un système chimique qui est composé d'un ensemble de N espèces interagissant au travers de M réactions élémentaires réversibles ou non. Ce système peut se traduire par la relation suivante

$$\sum_{k=1}^N \nu'_{kj} \mathcal{M}_k \rightleftharpoons \sum_{k=1}^N \nu''_{kj} \mathcal{M}_k \text{ pour } j = 1, M. \quad (2.52)$$

Dans l'équation précédente, ν'_{kj} et ν''_{kj} sont les coefficients stœchiométriques de la k ^{ième} espèce dans la réaction j et \mathcal{M}_k est le symbole de l'espèce k . La conservation de la masse assure

$$\sum_{k=1}^N \nu'_{kj} \mathcal{M}_k = \sum_{k=1}^N \nu''_{kj} \mathcal{M}_k \text{ ou } \sum_{k=1}^N \nu_{kj} \mathcal{M}_k \text{ pour } j = 1, M \quad (2.53)$$

avec ν_{kj} le coefficient net de la réaction tel que

$$\nu_{kj} = \nu''_{kj} - \nu'_{kj}. \quad (2.54)$$

Pour des raisons usuelles, les termes sources considérés sont ceux appliqués aux fractions massiques : $\dot{\omega}_k \sim [s^{-1}]$. Ce terme source global est donc la somme des termes sources concernant l'espèce k au travers des j réactions.

$$\dot{\omega}_k = \sum_{j=1}^M \dot{\omega}_{kj} = W_k \sum_{j=1}^M \nu_{kj} \mathcal{Q}_j \text{ avec } \frac{\dot{\omega}_{kj}}{W_k \nu_{kj}} = \mathcal{Q}_j, \quad (2.55)$$

Dans l'équation précédente, \mathcal{Q}_j est l'avancement de la j ^{ième} réaction. Cet avancement est calculé à partir de la loi d'action de masse : les concentrations des réactifs et des produits sont reliées par une expression dont la valeur est constante à une température donnée. La loi d'action de masse se traduit par la relation

$$\mathcal{Q}_j = K_{fj} \prod_{k=1}^N \left(\frac{\varphi Y_k}{W_k} \right)^{\nu'_{kj}} - K_{rj} \prod_{k=1}^N \left(\frac{\varphi Y_k}{W_k} \right)^{\nu''_{kj}}, \quad (2.56)$$

où K_{fj} est la constante de vitesse directe et K_{rj} est la constante de vitesse inverse. Notons que pour les réactions de recombinaison/dissociation ($A + B + M \rightleftharpoons AB + M$) la relation 2.56 devient

$$\mathcal{Q}_j = \left(\sum_{k=1}^N \alpha_{kj} \frac{\varphi Y_k}{W_k} \right) \cdot \left(K_{fj} \prod_{k=1}^N \left(\frac{\varphi Y_k}{W_k} \right)^{\nu'_{kj}} - K_{rj} \prod_{k=1}^N \left(\frac{\varphi Y_k}{W_k} \right)^{\nu''_{kj}} \right), \quad (2.57)$$

où le coefficient α spécifie l'efficacité de la collision associée à la $j^{\text{ième}}$ réaction et la $k^{\text{ième}}$ espèce. L'équation 2.56 est une expression exacte issue de l'étude théorique de la cinétique des gaz, les constantes de vitesse représentent la probabilité que la réaction se produise, la collision ayant eu lieu. L'avancement d'une réaction est donc le produit de la probabilité de collision et la probabilité d'une réaction après collision. Les constantes de vitesse sont modélisées par la loi d'Arrhenius généralisée :

$$K_{fj} = A_{fj} T^{\beta_j} \exp\left(-\frac{E_{aj}}{RT}\right), \quad (2.58)$$

où A_{fj} est la constante pré-exponentielle, β_j l'exposant sur la température et E_{aj} l'énergie d'activation de la réaction j . La constante de réaction inverse est calculée à partir de la constante d'équilibre des concentrations molaires K_{c_j} , tel que

$$K_{c_j} = \frac{K_{fj}}{K_{rj}} = \frac{\prod_{k=1}^N k^{\nu''_{kj}}}{\prod_{k=1}^N k^{\nu'_{kj}}}. \quad (2.59)$$

K_{c_j} est déduit à partir de la constante d'équilibre basée sur les pressions partielles K_{p_j} . Ces deux constantes sont reliées *via* la loi des gaz parfaits

$$K_{c_j} = K_{p_j} \left(\frac{P_{atm}}{RT}\right)^{\sum_{k=1}^N \nu_{kj}}. \quad (2.60)$$

avec

$$K_{p_j} = \frac{\prod_{k=1}^N \left(\frac{P_k}{P_{atm}}\right)^{\nu''_{kj}}}{\prod_{k=1}^N \left(\frac{P_k}{P_{atm}}\right)^{\nu'_{kj}}}. \quad (2.61)$$

Dans l'équation 2.61, P_{atm} est la pression standard qui est égale à 1 atmosphère et P_k est la pression partielle de l'espèce k . Le terme K_{p_j} est fermé suivant

$$K_{p_j} = \exp\left(-\frac{\Delta_r G_j^0}{RT}\right) = \exp\left(\frac{\Delta_r S_j^0}{R} - \frac{\Delta_r H_j^0}{RT}\right), \quad (2.62)$$

où Δ_r représente la variation entre les produits et les réactifs pour la réaction considérée. H_j^0 et le terme S_j^0 obéissent respectivement aux équations 2.63 et 2.64.

$$\frac{\Delta_r H_j^0}{RT} = \sum_{k=1}^N \nu_{kj} \frac{H_k^0}{RT} \quad (2.63)$$

$$\frac{\Delta_r S_j^0}{R} = \sum_{k=1}^N \nu_{kj} \frac{S_k^0}{R} \quad (2.64)$$

L'écriture de la constante de vitesse inverse se présente finalement sous la forme

$$K_{rj} = \frac{K_{fj}}{\left(\frac{P_a}{RT}\right)^{\sum_{k=1}^N \nu_{kj}} \exp\left(\frac{\Delta_r S_j^0}{R} - \frac{\Delta_r H_j^0}{RT}\right)} \quad (2.65)$$

où les termes H_j^0 et S_j^0 sont extraits des tables Jannaf.

2.6 Les équations sous l'hypothèse low-Mach

Les équations de la mécanique des fluides compressibles ont été posées dans la section précédente. Cependant dans de nombreuses configurations industrielles, les effets de compressibilité peuvent être négligés. Les équations compressibles sont alors approximées par l'hypothèse de faible nombre de Mach. Lorsque le fluide est considéré comme étant incompressible, les fluctuations de pression, de densité et de température liées aux ondes acoustiques peuvent être négligées. Afin d'introduire les équations résolues dans le formalisme low-Mach il est nécessaire d'exprimer le nombre de Mach, qui correspond à une vitesse normalisée par la vitesse du son

$$M_a = \frac{u}{a}, \quad (2.66)$$

où u est la norme de la vitesse de la configuration étudiée et a est la vitesse du son. Pour un gaz parfait la vitesse du son est de la forme

$$a = \sqrt{\gamma r T}. \quad (2.67)$$

Soit $\epsilon = \gamma M^2$, sous l'hypothèse Low-Mach $M \ll 1$, et donc $\epsilon \ll 1$. Les équations Low-Mach apparaissent lorsqu'on développe les équations de transport en série de variable ϵ tel que $Q = Q^0 + \epsilon Q^1$. Le formalisme des équations de transport des espèces 2.29 et de continuité 2.19 ne sont pas modifiées.

$$\frac{\partial \rho^0}{\partial t} + \frac{\partial \rho^0 u_i^0}{\partial x_i} = 0 \quad (2.68)$$

et

$$\frac{\partial \rho^0 Y_k^0}{\partial t} + \frac{\partial \rho^0 u_i^0 Y_k^0}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\rho^0 D \frac{\partial Y_k^0}{\partial x_j} \right) + \rho^0 \dot{\omega}_k. \quad (2.69)$$

L'équation d'état prend la forme suivante

$$P^0 = \rho^0 r T^0, \quad (2.70)$$

où P^0 est la pression thermodynamique qui est uniforme sur tout le domaine. Dans ces travaux, la pression thermodynamique est également considérée comme constante dans le temps. Le développement de l'équation de quantité de mouvement laisse apparaître un terme à l'ordre 1.

$$\frac{\partial \rho u_j^0}{\partial t} + \frac{\partial \rho^0 u_i^0 u_j^0}{\partial x_i} = -\frac{\partial P^1}{\partial x_j} + \frac{\partial \tau_{ij}^0}{\partial x_i} \quad (2.71)$$

P^1 est appelée pression dynamique, elle est générée par l'écoulement et est fonction de l'espace et du temps. La résolution du champ de pression dynamique se fait *via* la résolution d'une équation de Poisson [103]. L'équation de Poisson est obtenue par la divergence de l'équation de quantité de mouvement 2.71 tout en faisant intervenir l'équation de continuité 2.68. L'équation dans sa formulation finale s'écrit

$$\frac{\partial^2 P^1}{\partial x_j \partial x_j} = \frac{\partial^2 \rho^0}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 \rho^0 u_i^0 u_j^0}{\partial x_i \partial x_j} + \frac{\partial^2 \tau_{ij}^0}{\partial x_i \partial x_j} \quad (2.72)$$

Les méthodes de résolution de l'équation de Poisson ne sont pas abordées dans cet ouvrage, le lecteur intéressé par ces méthodes est renvoyé à la thèse de Malandain [84]. Outre la négligence

des phénomènes acoustiques, les solveurs low-mach présentent des inconvénients et des avantages. L'inconvénient vient du caractère elliptique de l'équation de Poisson. La résolution de cette équation peut occuper 80% du temps de calcul dans le pire des cas. Les sauts de densité et les maillages fortement irréguliers sont les deux conditions qui compliquent la résolution de l'équation de Poisson. L'avancement temporel Δt_{inc} d'un solveur low-Mach est cependant plus important que le pas de temps d'un solveur compressible dans une configuration identique Δt_c . Si on considère le critère de stabilité CFL (Courant–Friedrichs–Lewy [28]), le pas de temps d'un solveur compressible s'écrit selon l'équation 2.73 et le pas de temps d'un solveur incompressible s'écrit selon l'équation 2.74.

$$\Delta t_c < CFL \times \min_{i,j,k} \left(\frac{\Delta x_i}{|u_i| + a}; \frac{\Delta x_j}{|u_j| + a}; \frac{\Delta x_k}{|u_k| + a} \right) \quad (2.73)$$

$$\Delta t_{inc} < CFL \times \min_{i,j,k} \left(\frac{\Delta x_i}{|u_i|}; \frac{\Delta x_j}{|u_j|}; \frac{\Delta x_k}{|u_k|} \right) \quad (2.74)$$

2.7 Les équations étendues au formalisme LES

2.7.1 La turbulence

En 1883, Reynolds est le premier à avoir caractérisé les deux états possibles d'un écoulement fluide. Il peut être laminaire ou turbulent. Un écoulement laminaire a une distribution en vitesse constante. Il est possible de décrire le mouvement du fluide en le décomposant par des filets de fluides parallèles qui glisseraient les uns sur les autres sans se mélanger. A l'inverse, en régime turbulent, la vitesse du fluide à un instant donné et en un point donné de l'espace subit des fluctuations temporelles rapides. Ces fluctuations n'ont pas de période ou d'amplitude propres. Ces deux états très différents correspondent cependant aux mêmes équations, celles décrites dans la section précédente. La transition à la turbulence s'explique par la structure non-linéaire de ces équations déterministes. Le passage du régime laminaire au régime turbulent s'explique lorsque les forces d'inertie sont supérieures aux forces visqueuses. Ce rapport apparaît au travers du nombre de Reynolds

$$Re = \frac{UL}{\nu}, \quad (2.75)$$

où L , U et ν caractérisent la taille, la vitesse et la viscosité cinématique de l'écoulement. La viscosité cinématique obéit à la relation : $\nu = \mu/\rho$. L'état turbulent fait intervenir un grand nombre d'échelles. Ces échelles peuvent être caractérisées par leurs états énergétiques :

- **L'échelle macroscopique** correspond aux plus grandes structures qui sont souvent anisotropes. Les directions suivies par ces grandes structures sont propres à la géométrie étudiée. Ce sont ces échelles qui regroupent la majorité de l'énergie turbulente. L'échelle intégrale notée l_t est l'échelle qui caractérise les plus grandes structures tourbillonnaires. Il est possible de construire un nombre de Reynolds turbulent, noté Re_t , associé à l'échelle intégrale et à la fluctuation de vitesse associée u'_t

$$Re_t = \frac{u'_t l_t}{\nu}. \quad (2.76)$$

- **L'échelle de Taylor** regroupe les structures plus petites qui assurent le transfert d'énergie des grandes échelles vers les petites échelles. Ces mécanismes de transfert sont aussi responsables de la propriété d'isotropie des petites structures.
- **L'échelle de Kolmogorov** est la plus petite échelle, elle est notée η_k . C'est à cette échelle que les plus petites structures de l'écoulement sont dissipées sous forme de chaleur. De nombreux modèles sont basés sur l'hypothèse d'isotropie de ces petites structures.

Le transfert d'énergie des grandes structures vers les petites est décrit d'après le concept de cascade énergétique de Kolmogorov [68] et Richardson [110]. Ce concept est illustré sur la figure 2.2, où k est le nombre d'onde exprimé en m^{-1} . Le nombre d'onde est associé à une taille de structure turbulente, l , suivant : $l = 2\pi/k$. Cette cascade représente l'évolution de l'énergie dans le spectre des nombres d'ondes. La production d'énergie turbulente est assurée par les grandes échelles, donc les faibles nombres d'ondes, pour atteindre sa valeur maximale à $k = 2\pi/l_t$. L'énergie cinétique est ensuite diffusée dans la zone inertielle aux nombres d'ondes plus importants. Cette diffusion suit une pente en $k^{-5/3}$ dans le cas d'une turbulence homogène isotrope. Les échelles correspondantes aux nombres d'ondes les plus importants dissipent l'énergie cinétique en énergie thermique. Il est possible de relier l'échelle intégrale et

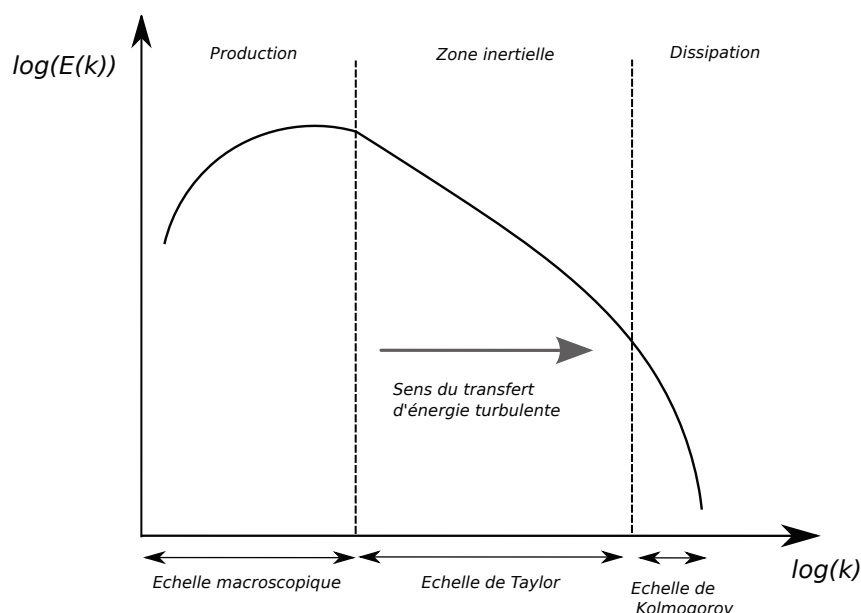


FIGURE 2.2: Illustration schématique de la cascade turbulente de Kolmogorov, où $E(k)$ l'énergie associée à la longueur d'onde k .

l'échelle de kolmogorov *via* un nombre de Reynolds local.

$$\frac{l_t}{\eta_k} \sim Re_t \quad (2.77)$$

On comprend dès lors qu'augmenter le nombre de Reynolds turbulent accroît la disparité d'échelles caractéristiques de l'écoulement. Un calcul DNS à fort Re_t s'avère être très coûteux du fait que les calculs DNS s'attachent à résoudre toutes les échelles de l'écoulement. Considérant une DNS d'un cube de taille d'arête L discrétisée en N points de façon homogène, la taille caractéristique de maille Δ est égale à L/N dans les trois directions de l'espace. Ce cube est

soumis à une turbulence homogène isotrope, il est donc nécessaire d'avoir $L \geq l_t$ et $\Delta \leq \eta_k$ afin de résoudre tous les mouvements du fluide. A l'aide de l'équation 2.77, on obtient :

$$N^3 \gtrsim Re_t^{9/4}. \quad (2.78)$$

Si l'on décide d'intégrer le système sur un intervalle de temps T avec un pas de temps dt tel que $T/dt = M$ et que l'on exprime maintenant la condition CFL, on obtient :

$$CFL = \frac{u'_t dt}{\Delta} \leq 1 \text{ soit } \left(\frac{u'_t T}{l_t} \right) \frac{N}{M} \leq 1. \quad (2.79)$$

Si on intègre le système sur un temps l_t/u'_t , on déduit $u'_t T/l_t \sim 1$ et donc $N \lesssim M$ et finalement :

$$M \gtrsim Re_t^{3/4}. \quad (2.80)$$

Si on effectue un calcul DNS dans les conditions sus-nommées avec un nombre de Reynolds turbulent dix fois supérieur, la mémoire requise sera multipliée par 200 et le nombre d'itérations temporelles requises pour simuler le même temps physique sera dix fois supérieur. Le coût de total d'un calcul DNS obéit donc à la relation

$$MN^3 \gtrsim Re_t^3. \quad (2.81)$$

2.7.2 DNS, RANS et LES

Dans la section précédente nous avons mis en évidence le coût de calcul prohibitif que représente un calcul DNS d'une simulation à fort Re_t . La DNS est donc une méthode de résolution des équations de la mécanique des fluides qui est consacrée aux configurations simples ou à l'étude de phénomènes isolés. Une revue de divers travaux DNS associés à la combustion pré-mélangée est proposée par Poinot et al [106]. Les contraintes liées au maillage et au nombre de Reynolds sont surmontées par la méthode RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes). Cette méthode consiste en la résolution des équations de Navier-Stokes moyennées temporellement, le résultat d'une telle simulation correspond donc à un champ moyen et non dans une succession de champs instantanés et ne permet donc pas de calculer les effets instationnaires tel l'allumage ou les instabilités de combustion. Cette approche consiste donc à modéliser l'ensemble des échelles turbulentes. La modélisation des échelles turbulentes, dont le modèle type [124] est le modèle à deux équations k et ϵ , repose sur l'hypothèse d'isotropie à fort nombre de Reynolds, hypothèse qui est mise en défaut lorsque la turbulence est fortement anisotrope. En 1963, Smagorinsky [121] propose une méthode de résolution des équations de Navier-Stokes qui consiste en la simulation des grandes échelles (SGE) ou Large Eddy Simulation (LES) en anglais. Les effets des petites échelles ne sont pas résolus mais modélisés, cette méthode tire avantage du caractère dissipatif des petites structures. Cette méthode fait donc intervenir un échelle de coupure, échelle de coupure qui doit se situer dans la zone inertielle. Dans la pratique, cette échelle caractéristique est déterminée par la taille de maille. Les mouvements du fluide évoluant aux échelles supérieures à la discrétisation spatiale du solveur sont résolues, tandis que les mouvements associés aux échelles caractéristiques inférieures sont modélisés. Cette méthode présente donc deux avantages majeurs : ce type de calcul permet d'avoir accès à l'évolution instationnaire de l'écoulement et le coût de calcul est fonction du maillage. Cependant ces avantages ne sont accessibles qu'après un effort de modélisation des

phénomènes de sous-maille. De nombreuses études sont nécessaires afin de développer de tels modèles. Les trois méthodes de résolution des équations de la LES sont illustrées par la figure 2.3.

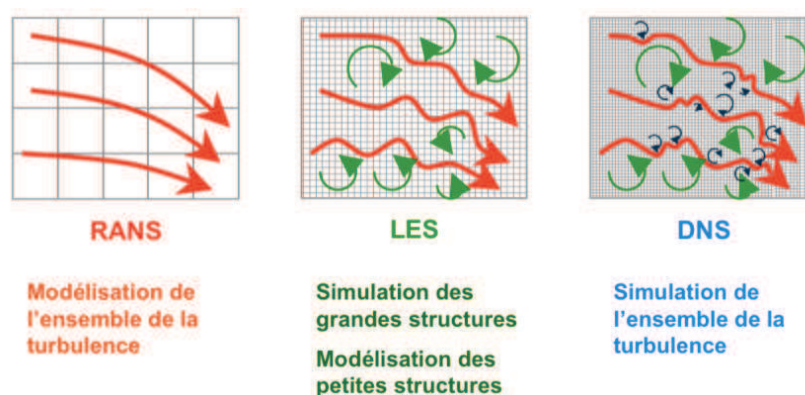


FIGURE 2.3: Représentations schématiques des trois méthodes de résolution des équations de Navier-Stokes, illustration tirée du manuscrit de thèse de A.Roux [112].

2.7.3 Etablissement des équations de la LES

L'approche LES est caractérisée par l'échelle de coupure qui détermine les échelles résolues et les échelles modélisées. La séparation entre les échelles résolues et les échelles modélisées s'obtient suivant une opération de filtrage des équations résolues en DNS. Ce filtre est un filtre passe-haut pour les échelles de la turbulence et il est obtenu mathématiquement par un produit de convolution dans l'espace physique

$$\bar{\Phi}(\mathbf{x}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Phi(\xi, t) G_{\Delta}(\mathbf{x} - \xi) d^3\xi, \quad (2.82)$$

où $\bar{\Phi}(\mathbf{x}, t)$ est la quantité filtrée et $G_{\Delta}(\mathbf{x})$ est le filtre associé à l'échelle Δ . $G_{\Delta}(\mathbf{x})$ suit la relation suivante

$$G_{\Delta}(\mathbf{x} - \xi) = \prod_{i=1,3} G_{i,\Delta}(x_i - \xi_i). \quad (2.83)$$

L'évolution de la grandeur Φ peut alors être décomposée en une partie évoluant aux échelles supérieures à Δ , notée $\bar{\Phi}$, et une partie évoluant aux échelles inférieures Φ' .

$$\Phi = \bar{\Phi} + \Phi' \quad (2.84)$$

Le filtre doit respecter les conditions suivantes

- la normalisation :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} G_{\Delta}(\xi) d^3\xi = 1 \quad (2.85)$$

- la linéarité (de façon triviale vu 2.82) :

$$\overline{\Phi_1 + \Phi_2} = \bar{\Phi}_1 + \bar{\Phi}_2 \quad (2.86)$$

- la commutativité des opérateurs de dérivation temporelle et spatiale

$$\frac{\partial \bar{\Phi}}{\partial t} = \frac{\partial \bar{\Phi}}{\partial t} \quad \text{et} \quad \frac{\partial \bar{\Phi}}{\partial x} = \frac{\partial \bar{\Phi}}{\partial x} \quad (2.87)$$

Les deux premières conditions sont nécessairement respectées par les solveur LES. Cependant des erreurs de commutation temporelle peuvent apparaître dans le cas où le maillage évolue en fonction du temps, ce qui est le cas des calculs de moteurs à combustion interne par exemple, voir la thèse de Moureau [93]. Des erreurs de commutation spatiale peuvent apparaître si le maillage subit de fortes distorsions spatiales. Le lecteur peut se référer aux travaux de Vasilyev et al [129]. Il est également nécessaire de souligner que l'opération de filtrage opérée lors d'un calcul LES ne repose pas sur un opérateur de Reynolds, ce qui peut aboutir aux relations

$$\bar{\Phi}(\mathbf{x}, t) \neq \overline{\bar{\Phi}}(\mathbf{x}, t) \quad \text{et} \quad (2.88)$$

$$\bar{\Phi}'(\mathbf{x}, t) \neq 0. \quad (2.89)$$

Dans le cadre d'un calcul LES, on introduit généralement la notion de moyenne de Favre qui correspond à une pondération par la densité.

$$\tilde{\Phi} = \frac{\bar{\rho}\bar{\Phi}}{\bar{\rho}}. \quad (2.90)$$

Les équations de la LES sont obtenues en appliquant l'opérateur de filtrage de Favre aux équations de la DNS.

Équation de continuité

$$\frac{\partial \bar{\rho}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho}\tilde{u}_i}{\partial x_i} = 0 \quad (2.91)$$

Équations de quantité de mouvement

$$\frac{\partial \bar{\rho}\tilde{u}_j}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho}\tilde{u}_i\tilde{u}_j}{\partial x_i} = -\frac{\partial \bar{P}}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{\tau}_{ij}}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i} [\bar{\rho}(\widetilde{u_i u_j} - \tilde{u}_i \tilde{u}_j)] \quad (2.92)$$

Équation d'espèces

$$\frac{\partial \bar{\rho}\tilde{Y}_k}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho}\tilde{u}_i\tilde{Y}_k}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho}D \frac{\partial \tilde{Y}_k}{\partial x_i} \right) + \bar{\rho}\tilde{\omega}_k - \frac{\partial}{\partial x_i} [\bar{\rho}(\widetilde{u_i Y_k} - \tilde{u}_i \tilde{Y}_k)] \quad (2.93)$$

Équation d'énergie totale non chimique

$$\frac{\partial \bar{\rho}\tilde{E}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho}\tilde{u}_i\tilde{E}}{\partial x_i} = \bar{\rho}\tilde{\omega}_T + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\lambda}_{th} \frac{\partial \tilde{T}}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\bar{\sigma}_{ij}\tilde{u}_i) + \bar{Q} - \frac{\partial}{\partial x_i} [\bar{\rho}(\widetilde{u_i E} - \tilde{u}_i \tilde{E})] \quad (2.94)$$

A l'exception de l'équation de continuité qui garde son formalisme originel, les équations de la LES font intervenir des termes en corrélation double, qui correspondent aux termes de transports convectifs non résolus. Ce sont ces termes qui nécessitent un effort de modélisation.

Pour fermer l'équation 2.92, il est nécessaire d'ajouter les contraintes de sous-mailles pour tenir compte de la turbulence de sous-maille dans l'écoulement filtré. Ces contraintes de sous-mailles sont mises en avant à travers le tenseur de Reynolds τ'_{ij} :

$$\tau'_{ij} = \bar{\rho}(\widetilde{u_i u_j} - \widetilde{u_i} \widetilde{u_j}) \sim -\bar{\rho} \widetilde{u'_i u'_j}. \quad (2.95)$$

L'approche de Boussinesq [16] est une approche phénoménologique, elle consiste à postuler que le frottement turbulent dissipe la quantité de mouvement de façon analogue aux plus petites échelles de la turbulence. Sous cette hypothèse, le tenseur de Reynolds peut être modélisé par un terme de viscosité turbulente :

$$\tau'_{ij} - \frac{1}{3} \delta_{ij} \tau'_{kk} = -2\mu_t \widetilde{S}_{ij}, \quad (2.96)$$

où \widetilde{S}_{ij} est la partie déviatrice du tenseur des contraintes associées au champ filtré et suit la relation :

$$\widetilde{S}_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \widetilde{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \widetilde{u}_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.97)$$

La modélisation de la turbulence de sous-maille se fait *via* l'estimation d'une viscosité turbulente ν_t . Dans ce contexte, l'unique différence entre les équations de Navier-Stokes calculées dans un formalisme DNS et dans le formalisme LES est la présence ou non d'une viscosité turbulente. L'influence de la viscosité turbulente est schématisée dans l'espace spectral sur la figure 2.4. La résolution des équations de Navier-Stokes dans le formalisme LES nécessite donc

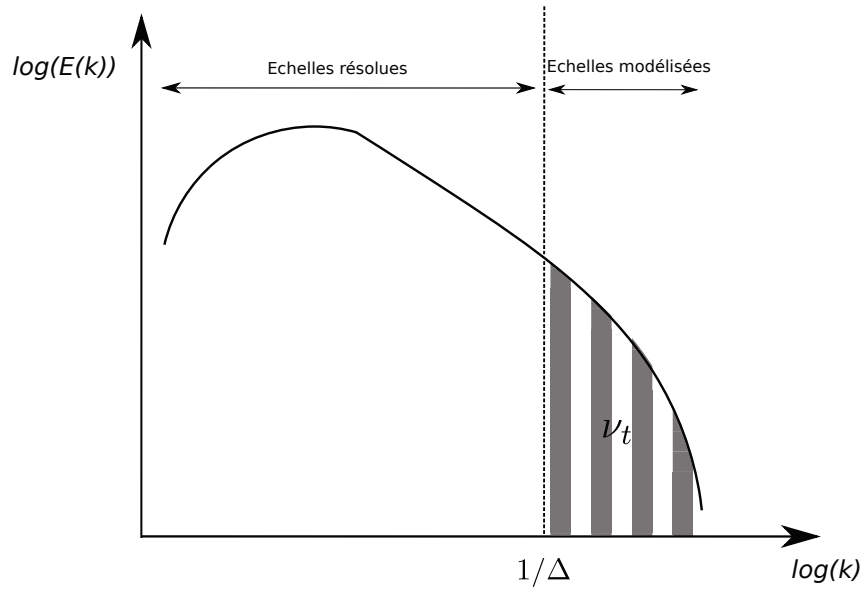


FIGURE 2.4: Représentation spectrale des échelles résolues et modélisées en LES.

une fermeture pour ν_t . Les deux modèles de sous-maille utilisés lors des trois années de thèse sont exposés dans la sous-section 2.7.3.1, le lecteur désireux d'élargir ses connaissances sur les modèles de sous-maille est invité à lire la thèse de Merlin [89].

2.7.3.1 La fermeture du tenseur de contrainte de sous-maille

Modèle de Smagorinsky

Le modèle de sous-maille précurseur est le modèle de Smagorinsky [121], il est basé sur l'hypothèse d'équilibre entre la production et la dissipation de l'énergie cinétique au niveau de l'échelle de filtrage. La viscosité turbulente qui modélise les effets de la turbulence de sous-maille s'exprime suivant :

$$\nu_t = (C_s \Delta)^2 |\bar{S}|, \quad (2.98)$$

où $|\bar{S}|$ est la norme du tenseur des déformations filtré \tilde{S}_{ij} , C_s est la constante de Smagorinsky et Δ est la taille de filtre. Les solveurs LES non-structurés définissent de façon conventionnelle Δ selon : $\Delta = \sqrt[3]{V_{cell}}$, où V_{cell} est le volume de la maille. Dans l'expression 2.98, C_s est la constante de Smagorinsky. Dans le cadre de cette étude, elle est définie selon une approche dynamique [46]. Cette approche estime la constante à partir du champ fluide résolu en faisant intervenir une taille de filtre supérieure à Δ . L'estimation de C_s se fait donc de façon dynamique et locale.

Modèle WALE

Le modèle Wall-Adapting Local Eddy-Viscosity (WALE) a été proposé par Ducros et al [100] afin d'obtenir un profil de viscosité turbulente réaliste en proche paroi et de prédire une transition à la turbulence avec précision. Selon le modèle WALE, la viscosité turbulente est obtenue suivant la relation :

$$\nu_t = (C_w^2 \Delta)^2 \frac{(s_{ij}^d s_{ij}^d)^{3/2}}{(\tilde{S}_{ij} \tilde{S}_{ij})^{5/2} + (s_{ij}^d s_{ij}^d)^{5/2}}, \quad (2.99)$$

où s_{ij}^d s'écrit :

$$s_{ij}^d = \frac{1}{2} (\tilde{g}_{ij}^2 + \tilde{g}_{ji}^2) - \frac{1}{3} \tilde{g}_{kk}^2 \delta_{ij}, \quad (2.100)$$

où $\tilde{g}_{ij}^2 = \tilde{g}_{ik} \tilde{g}_{kj}$ et $\tilde{g}_{ij} = \frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j}$.

La valeur de la constante C_w est fixée à 0.4929.

2.7.3.2 La fermeture du transport turbulent des espèces et de l'équation d'énergie

La modélisation adoptée pour la fermeture des flux turbulents des espèces et de l'énergie est faite par analogie avec l'hypothèse de Boussinesq, à savoir que le transfert d'espèce/d'énergie entre les échelles résolues et les échelles modélisées est similaire à un mécanisme de diffusion. Les flux turbulents sont donc estimés à partir du gradient des champs résolus et à partir d'un nombre de Schmidt et de Prandtl turbulent, comme l'indiquent les équations 2.101 et 2.102.

$$\widetilde{u_i Y_k} - \tilde{u}_i \tilde{Y}_k = - \frac{\nu_t}{Sc_{t,k}} \frac{\partial \tilde{Y}_k}{\partial x_i} \quad (2.101)$$

$$\widetilde{u_i E} - \tilde{u}_i \tilde{E} = - \frac{\nu_t}{Pr_t} \frac{\partial \tilde{E}}{\partial x_i} \quad (2.102)$$

Les valeurs choisies pour les calculs effectués avec le solveur compressible AVBP [24] sont : $Sc_t = Pr_t = 0.739$. Le nombre de Schmidt turbulent utilisé lors des calculs effectués avec le solveur low-mach YALES2 [94] est $Sc_t = 1.0$.

2.7.4 Problématique liée à la combustion turbulente

Ce chapitre est consacré aux équations qui sont à la base d'un calcul DNS réactif. Ces équations ont été étendues à l'hypothèse low-Mach ainsi qu'au formalisme LES. Les équations qui régissent les écoulements réactifs font intervenir une équation de transport supplémentaire par espèce considérée. De plus l'évaluation des termes sources chimiques impose la résolution d'un jeu d'équations non-linéaires et un pas de temps réduit au pas de temps du processus chimique le plus rapide. Compte tenu des puissances de calcul disponibles à la date de rédaction de ce manuscrit, et en raison des contraintes citées précédemment, il n'est pas possible de résoudre les équations d'un écoulement réactif turbulent sans un effort de modélisation. Le chapitre suivant présente deux approches de modélisation de la combustion utilisées dans le cadre de ces travaux : la première consiste à réduire le schéma cinétique considéré et la deuxième consiste à tabuler la cinétique chimique.

Chapitre 3

La modélisation de la combustion

Sommaire

3.1 Introduction	40
3.1.1 Les différents régimes de combustion	41
3.1.2 Equilibre thermodynamique et fraction de mélange	45
3.1.3 L'interaction combustion/turbulence	45
3.2 Les méthodes de réduction des cinétiques chimiques	47
3.2.1 Réduction de type chimique	47
3.2.2 Réduction de type mathématique	50
3.3 Les modèles de combustion turbulente	56
3.3.1 Modèle de flamme épaissie	56
3.3.2 PCM (Presumed Conditional Moment)	57

3.1 Introduction

Le chapitre précédent expose les équations des écoulements réactifs et le coût CPU que représente un calcul d'écoulement réactif turbulent. La combustion est un enchaînement de réactions chimiques exothermiques et auto entretenues, faisant intervenir un oxydant et un fuel. Les processus de dégradation du fuel et de l'oxydant font intervenir une grande quantité d'espèces intermédiaires et de produits de réactions. La résolution précise de ces processus nécessite une cinétique chimique détaillée. Les calculs prenant en compte une chimie détaillée ne sont possibles que pour certains archétypes de combustion. Dans un premier temps, ce chapitre présente les différents régimes de combustion qui peuvent être calculés en prenant en compte une telle cinétique, ainsi que les grandeurs physiques qui y sont associées. Dans un deuxième temps ce chapitre dresse l'état de l'art de la modélisation de combustion. Le but de la modélisation de la combustion est de réduire drastiquement le coût de calcul des propriétés thermodynamiques ainsi que la composition chimique du mélange réactif. Il existe deux approches principales pour réduire la cinétique chimique. La première approche simplificatrice consiste à discriminer les réactions et les espèces de moindres importances. Cette méthode est dite chimique puisque le schéma cinétique ainsi obtenu conserve sa forme générale. La deuxième approche consiste à tabuler les processus chimiques les plus rapides pour ne résoudre que les processus chimiques lents. Finalement, Les deux modèles de combustion turbulente,

découlant de ces deux approches de réduction de la cinétique et utilisés dans le cadre de cette thèse, sont présentés.

3.1.1 Les différents régimes de combustion

L'expression des termes sources chimiques présentée dans la section précédente fait intervenir un système hautement nonlinéaire. La résolution de ce système est coûteuse et implique l'emploi d'une méthode de Newton. C'est pourquoi les solveurs de cinétique chimique complexe sont destinés aux calculs d'archétypes de combustion : réacteur homogène, flamme de pré-mélange stationnaire ou encore flamme de diffusion stationnaire. Ces archétypes de combustion ainsi que leurs grandeurs caractéristiques sont présentés dans les sous-sections suivantes.

3.1.1.1 Les réacteurs parfaitement pré-mélangés ou Perfectly Stirred Reactor (PSR)

Cet archétype de combustion modélise l'auto-inflammation d'un mélange homogène. Le problème consiste dans la résolution temporelle des termes sources chimiques et des propriétés thermodynamiques du mélange en un point de l'espace. On parle de PSR dès lors que le problème est défini comme homogène dans l'espace. De nombreux types de PSR sont définis dans la littérature. Les PSR qui ont été calculés dans le cadre de cette thèse l'ont été à pression constante. Dans ce contexte le volume du PSR s'adapte à la pression pour que cette dernière reste constante.

3.1.1.2 Les flammes de pré-mélange

Une flamme de pré-mélange laminaire monodimensionnelle est schématisée sur la figure 3.1. Le front de flamme est l'épaisseur de fluide dans laquelle les réactions chimiques se produisent.

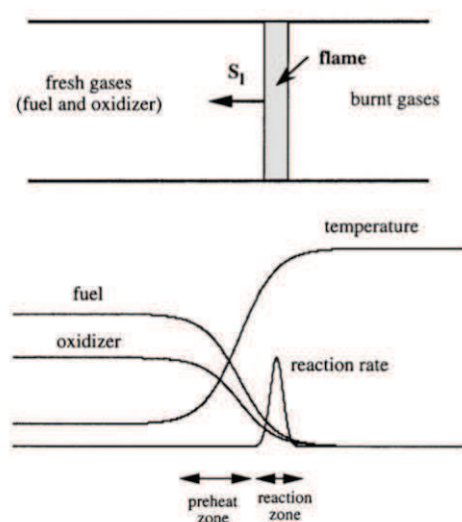


FIGURE 3.1: Représentations schématisées de la structure d'une flamme pré-mélangée stationnaire monodimensionnelle [134].

De part et d'autre du front de flamme se trouvent les gaz frais et les gaz brûlés. Les gaz frais

contiennent les réactifs nécessaires à la combustion, la notation u pour "unburnt" est utilisée pour les caractériser. Les gaz brûlés comportent les produits de combustion, l'indice qui caractérise les grandeurs liées aux gaz brûlés est b pour "burnt". Les flammes de pré-mélange sont caractérisées par trois grandeurs importantes : la richesse du mélange, l'avancement de combustion et la vitesse de flamme.

- La richesse, notée ϕ , est le rapport normalisé de quantité d'oxydant et de fuel d'un mélange. Ce rapport vaut un lorsque le fuel et l'oxydant sont dans les proportions stœchiométriques, c'est-à-dire que le fuel et l'oxydant sont en proportion optimale. Les mélanges qualifiés de riches ont une richesse supérieure à un, le fuel est en excès et donc une partie du carburant sera encore présente en fin de combustion. A l'inverse si la richesse est inférieure à un les gaz brûlés contiendront de l'oxydant. L'écriture du rapport stœchiométrique se fait via l'écriture de la réaction globale de combustion : $\nu_F F + \nu_O O \rightarrow \nu_P P$, avec ν_P , ν_O et ν_F les coefficients molaires stœchiométriques de la réaction globale. Il est alors possible d'écrire le rapport stœchiométrique s tel que

$$s = \frac{\nu_O M_O}{\nu_F M_F}, \quad (3.1)$$

et donc l'expression de la richesse :

$$\phi = s \frac{Y_{F,u}}{Y_{O,u}}. \quad (3.2)$$

- La combustion consiste dans la dégradation des réactifs en produits de réactions, le tout accompagné d'un dégagement de chaleur. Il est possible de caractériser l'avancement de la réaction globale de combustion à l'aide d'une variable de progrès dont la valeur vaut zéro dans les gaz frais et un dans les gaz brûlés. Cette variable, notée c , peut être construite à partir de la température

$$c = \frac{T - T_u}{T_b - T_u}, \quad (3.3)$$

ou à partir de fractions massiques d'espèces :

$$c = \frac{\sum_1^{N_S} \alpha_i Y_i}{\sum_1^{N_S} \alpha_i Y_i^{eq}} = \frac{Y_c}{Y_c^{eq}}. \quad (3.4)$$

Pour que la variable de progrès soit capable de caractériser l'avancement des réactions chimiques, il est nécessaire que son évolution soit strictement monotone dans le front de flamme. Il est possible d'estimer l'épaisseur du front de flamme à partir du gradient de température ou du gradient de la variable de progrès

$$\delta_{th} = \frac{T_b - T_u}{\left| \frac{dT}{dx} \right|_{max}}, \quad (3.5)$$

$$\delta_{Y_c} = \frac{Y_c^{eq} - Y_c^u}{\left| \frac{dY_c}{dx} \right|_{max}}. \quad (3.6)$$

- La vitesse de flamme laminaire est définie comme la vitesse des gaz frais qui assure un front de flamme stationnaire, elle est notée S_l . Cette vitesse est relative à une vitesse de propagation du front de flamme et résulte d'une compétition entre les termes de diffusion

et les termes sources : $S_l \sim \mathcal{D}_{th}/\delta_{th}$. La vitesse de flamme est fonction de la température des gaz frais, de la pression et de la richesse. Elle peut être calculée selon

$$S_l = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \rho \dot{\omega}_{Y_c} dx}{\rho_u Y_c^{eq}}. \quad (3.7)$$

Les flammes de pré-mélange peuvent être calculées avec le modèle de transport complexe et le modèle qui suppose les nombres de Lewis unitaires, les deux modèles de transport ont été décrits dans le chapitre 2.

3.1.1.3 Les flammes de diffusion

La phénoménologie des flammes de pré-mélange a été exposée dans la section précédente, ce régime de combustion implique que le fuel et l'oxydant soient mélangés avant le front de flamme. Le processus régissant les flammes de diffusion est différent, les réactifs réagissent lorsqu'ils se mélangent. Une flamme de diffusion laminaire est représentée par la figure 3.2. Deux conditions thermodynamiques d'entrées sont définies : une pour le fuel et une pour l'oxy-

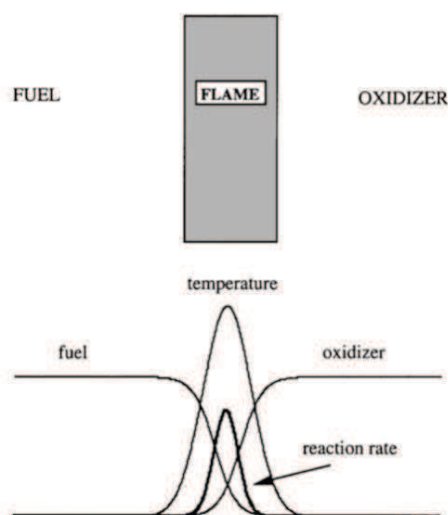


FIGURE 3.2: Représentations schématiques de la structure d'une flamme de diffusion stationnaire monodimensionnelle [134].

gant. Le fuel et l'oxydant se mélangent et diffusent du fait des forts gradients engendrés dans le front de flamme. Le front de flamme ne peut pas se propager du côté de l'injection de fuel sans oxydant et inversement le front de flamme ne peut pas se propager du côté de l'oxydant sans fuel. Le front de flamme se stabilise dans la zone où les réactions sont les plus favorables, c'est-à-dire la zone stœchiométrique, et son épaisseur est proportionnelle à la diffusion du fuel et de l'oxydant. La solution d'une flamme de diffusion laminaire est intimement liée au processus de mélange. Il est donc primordial d'introduire une variable qui rend compte de ce mélange. Cette variable est notée Z , elle peut être exprimée de différentes manières. La première formulation de Z se base sur les fractions massiques de fuel et d'oxydant tout en considérant la réaction

globale de combustion : $\nu_F F + \nu_O O \rightarrow \nu_P P$. Les équations de transport des trois espèces F , O et P suivent l'équation 2.29. La cinétique considérée comportant une unique étape, on a

$$\dot{\omega}_O = s\dot{\omega}_F. \quad (3.8)$$

En combinant l'équation de transport de l'espèce O et F ainsi que l'équation 3.8) on obtient une équation de transport pour Z sans terme source

$$\frac{\partial \rho Z}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_i Z}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(D \frac{\partial Z}{\partial x_j} \right) \quad (3.9)$$

avec

$$Z = sY_F + Y_O \text{ et l'hypothèse } \mathcal{D}_O = \mathcal{D}_F. \quad (3.10)$$

Cette variable peut être normalisée de façon à valoir un dans la condition fuel et zéro dans la condition oxydant. Z suit alors la formulation suivante

$$Z = \frac{sY_F - Y_O + Y_{O,u}}{sY_{F,u} + Y_{O,u}} \quad (3.11)$$

ou

$$Z = \frac{1}{1 + \phi} \left(\phi \frac{Y_F}{Y_{F,u}} - \frac{Y_O}{Y_{O,u}} + 1 \right). \quad (3.12)$$

Il existe une valeur de Z qui correspond à la richesse stœchiométrique

$$Z_{st} = \frac{Y_{O,0}}{Y_{O,u} + sY_{F,u}}. \quad (3.13)$$

La fraction de mélange et la richesse sont reliées pas la relation

$$\phi = \frac{Z}{1 - Z} \times \frac{1 - Z_{st}}{Z_{st}}. \quad (3.14)$$

La richesse d'un moteur aéronautique est elle caractérisée par le FAR ("Fuel Air Ratio"), qui relie les débits d'oxydant et de fuel selon l'équation

$$FAR = \frac{\dot{m}_F}{\dot{m}_O} = \frac{Z}{1 - Z}. \quad (3.15)$$

La fraction de mélange est donc un scalaire passif indépendant de l'avancement de la cinétique. Cependant si le front de flamme n'est pas de faible épaisseur et que le fuel et l'oxydant ne diffusent pas de la même façon, la relation 3.9 peut se montrer défailante. Si l'épaisseur du front de flamme est trop importante alors le fuel et l'oxydant peuvent se dégrader en espèces intermédiaires et ces espèces intermédiaires peuvent réagir au sein d'une couche épaisse dans laquelle les concentrations de fuel et d'oxydant sont négligeables. Pour palier à cette lacune Masri et Bilger [86] proposent une nouvelle écriture de la fraction de mélange basée sur la conservation des bilans atomiques

$$Z = \frac{(Y_C - Y_{C,u})/(\nu_C M_C) + (Y_H - Y_{H,u})/(\nu_H M_H) - (Y_O - Y_{O,u})/(\nu_O M_O)}{(Y_{C,F} - Y_{C,u})/(\nu_C M_C) + (Y_{H,1} - Y_{H,u})/(\nu_H M_H) - (Y_{O,F} - Y_{O,u})/(\nu_O M_O)}, \quad (3.16)$$

avec ν_H et ν_C les nombres d'atomes de carbone et d'hydrogène contenus dans l'espèce du fuel et ν_O le nombre d'atomes d'oxygène contenues dans l'oxydant, ($\nu_O = 2$ pour le dioxygène).

Il est toutefois important de noter que dans le cas où le transport des différentes espèces n'est pas calculé sous l'hypothèse des nombres de Lewis unitaires alors le bilan atomique de chaque atome n'évolue pas nécessairement linéairement avec le mélange. Aucune flamme de diffusion n'a été calculée durant cette thèse, cependant il peut être observé que les travaux de Fiorina et al [41] montrent que les flammes de diffusion et de pré-mélange ont des comportements similaires dans l'espace des phases (Z, Y_c) . Ceci à la condition que les nombres de Lewis des espèces soient considérés comme égaux à un et que le taux de dissipation scalaire reste faible. Le taux de dissipation scalaire est une grandeur relative à l'intensité de mélange, il suit la relation

$$\chi = 2D_Z \left(\frac{\partial Z}{\partial x_i} \frac{\partial Z}{\partial x_i} \right). \quad (3.17)$$

3.1.2 Equilibre thermodynamique et fraction de mélange

L'équilibre thermodynamique d'un mélange réactif est un état très important dans l'élaboration d'un modèle de combustion ou dans le développement d'un schéma cinétique réduit. Selon le second principe de la thermodynamique, l'équilibre thermodynamique correspond à l'état d'entropie maximale. Pour un bilan atomique, une pression et une enthalpie massique donnés il n'existe qu'un unique état qui satisfait cette condition. Il n'existe donc qu'une composition possible à l'équilibre thermodynamique¹. L'équilibre thermodynamique ne dépend donc pas de la cinétique chimique considérée². Sous l'hypothèse que toutes les espèces diffusent comme la température (hypothèse de nombres de Lewis unitaires) la fraction de mélange rend compte du bilan atomique et de l'enthalpie. Si on considère la pression thermodynamique constante, alors l'équilibre peut être déduit directement de Z .

3.1.3 L'interaction combustion/turbulence

Les sous-sections précédentes présentent les régimes de combustion laminaires ou homogènes. La difficulté relative aux calculs d'écoulements réactifs tient sa source du couplage entre la turbulence et la combustion. Le couplage entre combustion/turbulence dans un régime de flamme de pré-mélange est abordé dans cette sous section. Ce couplage peut être appréhendé au travers de deux nombres adimensionnels : le nombre de Damköhler et le nombre de Karlovitz. Le nombre de Damköhler, noté Da , compare le temps caractéristique de la chimie et celui des grandes échelles de la turbulence. Il obéit à la relation

$$Da = \frac{\tau_c}{\tau_k} = \frac{S_L l_t}{u' \delta_{th}}. \quad (3.18)$$

Lorsque $Da \gg 1$, la taille des tourbillons est trop importante pour perturber le front de flamme et la structure interne du front de flamme s'approche de la structure d'une flamme laminaire canonique. Le front peut être vu localement comme une flammelette. On parle alors de régime de flammelette. Dans la configuration opposée, si $Da \ll 1$ alors les fluctuations de l'écoulement

1. Dans la pratique l'état d'équilibre est obtenu selon une méthode itérative. Elle consiste à évaluer la composition du mélange à l'équilibre en minimisant l'énergie de Gibbs et en fixant la température et la pression à l'équilibre. Ensuite la température et la pression sont corrigées pour correspondre à la dernière composition calculée. Ce procédé est répété jusqu'à ce que le critère de convergence soit satisfait.

2. L'équilibre thermodynamique dépend toutefois des espèces considérées dans le schéma cinétique.

interviennent sur des temps beaucoup plus faibles que celui de la chimie. Le régime de combustion le plus souvent associé à cette gamme de nombre de Damköhler est le régime de combustion homogène, qui correspond à une combustion type PSR. L'étude du nombre de Damköhler est souvent associée à l'étude du nombre de Karlovitz. Le nombre de Karlovitz fait état du rapport entre le temps caractéristique de la combustion et la plus petite échelle de la turbulence, l'échelle de Kolmogorov. Le nombre de Karlovitz obéit à la relation

$$Ka = \frac{\tau_k}{\tau_c} = \frac{u'_k \delta_{th}}{S_L \eta_k}. \quad (3.19)$$

Le nombre de Karlovitz est utilisé pour discriminer les régimes au nombre de Damköhler élevé. Dans le contexte où $Da > 1$ et $Ka < 1$, le temps chimique est inférieur à toutes les échelles de temps de la turbulence. Il s'ensuit que la zone réactionnelle du front de flamme n'est pas affectée par la turbulence. Deux régimes de combustion correspondent à ces conditions : le régime de flamme "corrugated flamelets" et le régime de flamme "wrinkled flamelets". Si le rapport des u'_k/S_L est inférieur à un, le tourbillon est incapable de plisser le front de flamme. Nous sommes dès lors dans le régime dit de flamme mince ("wrinkled flamelet"). En revanche, dans la mesure où le rapport u'_k/S_L est supérieur à un, la turbulence a pour effet de créer des poches de gaz frais et de gaz brûlés. Les différents régimes de combustion turbulente introduits dans cette sous-section sont représentés sur la figure 3.3. Le régime de combustion rencontré dans les chambres de combustion aéronautiques se situe dans le régime de flammelette, sauf peut être au ralenti ou lors des accélérations.

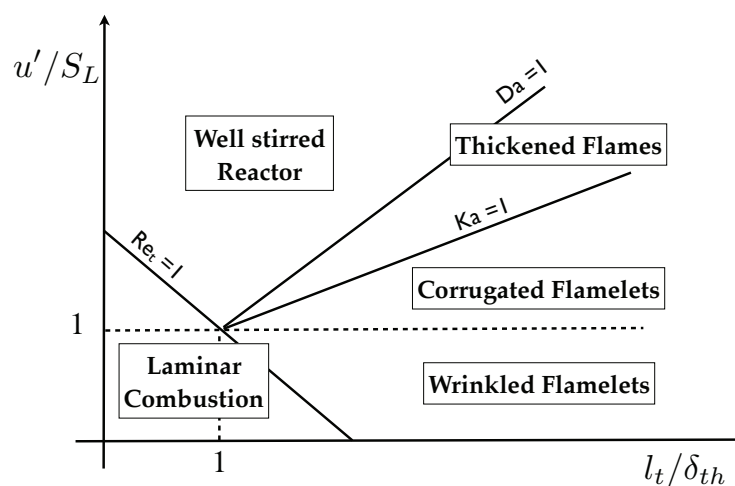


FIGURE 3.3: Diagramme de régimes de flamme de pré-mélange, basé sur les travaux de Peters [104].

3.2 Les méthodes de réduction des cinétiques chimiques

Les contraintes industrielles en terme d'émissions de polluants font que les schémas cinétiques détaillés doivent être de plus en plus précis et donc doivent contenir de plus en plus d'informations. Les mécanismes détaillés sont construits par un empilement successif de sous-mécanismes décrivant chacun les réactions de nouveaux composés ainsi que les procédés intermédiaires. Ces schémas font intervenir entre 50 et 7 000 espèces³, ils sont ensuite validés par l'expérience. Le couplage entre la combustion et la mécanique des fluides entraîne un coût de calcul très important [72]. De plus les systèmes réactifs, et tout particulièrement la combustion, font intervenir des processus rapides et des processus lents. La disparité de ces temps caractéristiques, notés τ_k , est en partie responsable de la raideur du système différentiel associé. Pour l'ensemble de ces raisons, il est nécessaire de simplifier les mécanismes réactionnels. Le développement d'un schéma cinétique réduit consiste dans la simplification de son expression tout en conservant certaines propriétés essentielles, comme par exemple : le délai d'auto-inflammation, la vitesse de flamme ou encore l'évolution des espèces polluantes. Le choix des phénomènes à représenter conditionne la taille finale du schéma cinétique réduit. D'autre part la réduction d'un schéma cinétique implique nécessairement une perte d'information, ceci conduit à une loi intangible : un schéma cinétique réduit ne peut être meilleur que le schéma cinétique original. Les procédés de réduction de la cinétique chimique se distinguent en deux groupes : les méthodes de réduction chimiques et les méthodes de réduction mathématiques. Les méthodes de réductions chimiques conservent la forme générale du schéma cinétique. Elles procèdent à l'élimination des espèces et réactions non primordiales ou encore à la recombinaison de réactions élémentaires en une réaction globale. Les méthodes de réduction mathématiques sont les plus drastiques, elles engendrent une perte d'information importante. Cette approche est utilisée lorsque peu de grandeurs sont ciblées, elle aboutit à une description globale du système chimique au travers de paramètres généraux ou d'équations polynomiales. L'ensemble de ces procédés de simplification de la chimie sont à la base de nombreux modèles de combustion et plus particulièrement des modèles d'émission de polluant. Les sous-sections suivantes exposent dans un premier temps les principaux procédés de réduction chimiques et dans un second temps les procédés de réduction mathématiques.

3.2.1 Réduction de type chimique

3.2.1.1 Etude des flux atomiques

L'analyse des flux atomiques consiste à déterminer les flux qui relient les espèces partageant au moins un atome en commun. Cette approche proposée par Redel *et al.* [108] permet d'apprécier les espèces à l'influence mineure ainsi que leurs processus associés. Les flux atomiques des quatre atomes C , H , O et N permet d'appréhender l'influence des chemins réactionnels. Il est toutefois important d'effectuer cette analyse à différents avancements de la chimie : un chemin réactionnel peut être négligeable à un instant et prédominant à un autre. En considérant la réaction élémentaire :



3. Le nombre d'espèces est dépendant de la molécule hydro-carbonée considérée [73].

où k et k' sont deux espèces qui sont composées d'au moins un atome A , il est alors possible d'exprimer le flux d'atomes A entre ces deux espèces selon l'équation

$$\phi_{kk',j}(A) = \frac{Q_j N_{A,k} N_{A,k'}}{N_{A,j}}, \quad (3.21)$$

avec $N_{A,k}$ le nombre d'atomes A dans l'espèce k et $N_{A,j}$ le nombre d'atomes A dans le membre de gauche de la $j^{\text{ième}}$ équation ⁴. Il est possible d'exprimer le flux entrant $\phi_k^+(A)$ et sortant $\phi_k^-(A)$ pour chaque espèce

$$\phi_k^+(A) = \sum_{k'} N_s (\phi_{k'k}(A) - \phi_{kk'}(A)) \quad (3.22)$$

et

$$\phi_k^-(A) = \sum_{k'} N_s (\phi_{kk'}(A) - \phi_{k'k}(A)). \quad (3.23)$$

Dans les expressions 3.22 et 3.23 l'indice N_A regroupe toutes les espèces contenant au moins un atome A , ces expressions peuvent également s'exprimer à partir d'un flux net

$$\phi_{kk'}^{net}(A) = \phi_{kk'}(A) - \phi_{k'k}(A). \quad (3.24)$$

Le flux atomique entrant de l'espèce k est défini comme la somme des flux atomiques nets des espèces k' vers k . Il existe plusieurs manières de représenter les flux atomiques, ici les diagrammes décomposent les flux $\phi_{kk'}(A)$ pour faire intervenir la contribution de chaque espèce M responsable de ce flux. Ce rapport s'exprime au travers de l'équation

$$\Phi_{kk',M}(A) = \frac{\sum_j^{N_M} \phi_{kk',j}(A)}{\phi_{kk'}(A)}, \quad (3.25)$$

où N_M est le nombre de réactions faisant intervenir k et M . $\Phi_{kk',M}(A)$ est donc la proportion du flux atomique $\phi_{kk'}(A)$ entre les espèces k et k' dû à l'espèce M . Le diagramme résultant de l'équation 3.20 est représenté sur la figure 3.4.

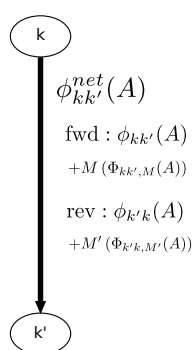


FIGURE 3.4: Schéma de synthèse d'un diagramme de flux atomique entre les espèces k et k' .

4. Q_i est l'avancement de la réaction définie selon l'équation 2.55

3.2.1.2 L'Approximation de l'Etat Quasi-Stationnaire : AEQS

La démarche consiste à supposer que de nombreuses réactions élémentaires ne contribuent pas significativement à l'évolution du système chimique. Ces réactions élémentaires font intervenir des espèces qui réagissent très vite et dont on peut négliger l'évolution temporelle. Ce procédé consiste à diminuer la raideur du système en diminuant la disparité de temps caractéristique propre au schéma cinétique complexe. Les processus chimiques les plus rapides ne sont plus résolus mais modélisés. Cette méthode introduite par Bodenstein et Lüttemeyer [14] a permis l'élaboration de solutions analytiques proches du système d'équations différentielles. La méthode consiste à postuler que certaines espèces très réactives réagissent sur des temps caractéristiques très faibles, elles sont détruites à la vitesse où elles sont produites. Cette hypothèse permet de déduire algébriquement la concentration des espèces intermédiaires et de réduire considérablement la raideur du système chimique, les temps les plus rapides de la cinétique n'étant plus calculés. Ce procédé peut facilement être illustré au travers de l'exemple d'une cinétique simple :



Si $k_1 \ll k_2$ alors B est en état quasi-stationnaire et la première réaction est limitante. On en déduit :

$$\frac{d[B]}{dt} = k_1 [A] - k_2 [B] \simeq 0 \quad (3.27)$$

et donc

$$[B] \simeq \frac{k_1}{k_2} [A] . \quad (3.28)$$

On peut alors approximer le système en résolvant une unique équation :

$$\frac{d[C]}{dt} \simeq k_1 [A] . \quad (3.29)$$

L'AEQS est une méthode très utilisée, la sélection des espèces intermédiaires est un paramètre clef. Il existe différentes méthodes automatiques. Le lecteur désireux de les connaître est invité à s'orienter vers l'ouvrage de Peters et Kee [25].

3.2.1.3 L'Approximation Equilibre Partiel : AEP

L'approximation d'équilibre partiel est une approche similaire à l'approche AEQS. Ces deux dernières consistent à trouver une relation algébrique pour décrire la concentration des espèces rapides en fonction des processus les plus lents. Concernant l'AEP, ce ne sont pas les espèces qui sont considérées à l'équilibre mais certaines réactions. Considérons la réaction élémentaire suivante :



L'approximation d'équilibre partielle appliqué à l'équation 3.30 conduit à la relation :

$$K = \frac{[A]^a [B]^b}{[C]^c [D]^d} . \quad (3.31)$$

Une relation algébrique peut ainsi être écrite pour déterminer les concentrations des espèces intervenant dans les réactions supposées à l'équilibre partiel. Notons que cette hypothèse ne se montre valable que lorsque la température est élevée, ceci est certainement dû au fait que la constante de réaction est fonction de la température.

3.2.2 Réduction de type mathématique

3.2.2.1 Repro-modeling

La méthode de repro-modeling est proposée par Turányi [125] en 1994, cette méthode consiste à "fitter" l'évolution de certains processus chimiques grâce à des polynômes multi-variables. Dans la pratique cela revient à exprimer des concentrations d'espèces et des vitesses de réactions en fonction de polynômes d'espèces dont l'évolution est résolue. Cette approche diminue le coût de calcul de façon drastique. Cette procédure est automatisée et nécessite peu de choix arbitraire de l'utilisateur. L'inconvénient de ce type de réduction et qu'elle est effectuée pour une gamme de fonctionnement précise, et que sa validité est faible hors de ces limites. Une considération plus vaste de ces limites conduit à un accroissement extrêmement important du polynôme et conduit à une complexité importante lors de l'opération de "fittage", ainsi qu'un handicap quant à la robustesse du modèle. Cette méthode a souvent été utilisée dans le domaine de la cinétique atmosphérique, mais peu dans le domaine de la combustion. Cette approche n'est pas sans rappeler les méthodes de réseaux de neurones [118, 59].

3.2.2.2 Intrinsic Low-Dimensional Manifold : ILDM

Le calcul d'écoulements turbulents réactifs est coûteux de part le nombre de degrés de liberté très important et de part la raideur du système chimique considéré. La raideur du système chimique est fonction de la disparité des temps caractéristiques, cette disparité est illustrée par la figure 3.5. La méthode ILDM est basée sur l'étude des temps caractéristiques du système chimique. Cette méthode, proposée par Maas et Pope en 1992 [83], a été développée initialement pour discriminer les temps chimiques les plus rapides des temps chimiques les plus lents, et de diminuer ainsi la raideur du système chimique. Cette analyse du système chimique a conduit à la mise en évidence d'une variété⁵ attractive de faible dimension (Intrinsic Low-Dimensional Manifolds en anglais). L'existence de cet attracteur rend inutile le calcul des espèces rapides, seule l'évolution des espèces les plus lentes est nécessaire pour connaître l'évolution du système thermodynamique. Cette propriété est à la base des méthodes de tabulation de la chimie, les évolutions des espèces lentes sont tabulées en supposant que les espèces rapides ont convergé sur l'attracteur. Le paragraphe suivant pose les fondements mathématiques de la méthode ILDM ainsi que son interprétation physique.

Fondements mathématiques

La méthode ILDM [83] consiste à étudier le système chimique, mis sous sa forme matricielle, au travers des valeurs propres et des vecteurs propres associés. Le système d'équations

5. Une variété de n dimensions est un espace topologique qui peut être approximé en chaque point par un espace Euclidien de n dimensions.

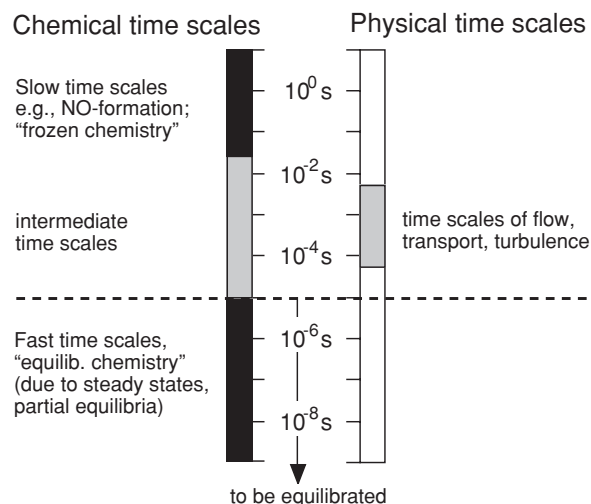


FIGURE 3.5: Classification des temps caractéristiques d'un écoulement réactif [139].

différentielles qui pilote un mélange homogène à pression et enthalpie constantes est :

$$\begin{cases} \frac{\partial H}{\partial t} = 0 \\ \frac{\partial P}{\partial t} = 0 \\ \frac{\partial Y_i}{\partial t} = \dot{\omega}_i, (i = 1, \dots, N_s). \end{cases} \quad (3.32)$$

Ce système peut s'écrire sous forme vectorielle :

$$\frac{d\vec{\psi}}{dt} = \vec{F}(\vec{\psi}), \quad (3.33)$$

avec $\vec{\psi} = (H, P, Y_1, \dots, Y_{N_s})^T$. L'expression 3.33 est intuitive mais n'est pas adaptée à l'étude de la dynamique du système au travers des temps caractéristiques. Pour se faire on étudie la réponse du système à un état de référence $\vec{\psi}_r$ et soumis à une perturbation. Une approximation linéaire de la fonction vectorielle \vec{F} au voisinage de l'état de référence par un développement en série de Taylor au premier ordre donne :

$$\frac{d\vec{\psi}(t)}{dt} = \vec{F}(\vec{\psi}(t)) \simeq \vec{F}(\vec{\psi}_r) + \mathbf{J}_r (\vec{\psi}(t) - \vec{\psi}_r), \quad (3.34)$$

avec \mathbf{J}_r la matrice Jacobienne du système évaluée à l'état de référence :

$$\mathbf{J}_r = \left. \frac{\partial \vec{F}}{\partial \vec{\psi}} \right|_{\vec{\psi}_r}. \quad (3.35)$$

Dans cette section et dans le reste de cet ouvrage les caractères en **gras** constituent la notation qui désigne les matrices carrées. En supposant \mathbf{J}_r diagonalisable, alors il existe une base dans

laquelle la $i^{\text{ème}}$ composante ne dépend que du $i^{\text{ème}}$ vecteur composant cette nouvelle base. Cette base est composée des vecteurs propres de \mathbf{J}_r , notée \mathbf{V} . Ainsi nous avons :

$$\mathbf{J}_r \cdot \mathbf{V} = \mathbf{V} \cdot \mathbf{\Lambda}, \quad (3.36)$$

avec $\mathbf{\Lambda}$ la matrice diagonale des valeurs propres de \mathbf{J}_r et \mathbf{V} la matrice des vecteurs propres tel que $\mathbf{V} = (v_1, v_2, \dots, v_{N_s+2})$. Les temps caractéristiques apparaissent lorsque le problème est considéré dans la base des vecteurs propres. Pour se faire on introduit $\vec{\eta}$ tel que :

$$\vec{\eta} = \mathbf{V}^{-1} \cdot \vec{\psi}. \quad (3.37)$$

Puisque la matrice \mathbf{J}_r est diagonalisable, le système d'équations peut être décomposé en modes découplés. Ces modes sont exprimés dans la base des vecteurs propres :

$$\frac{d\vec{\eta}}{dt} = \mathbf{\Lambda} \vec{\eta}(t). \quad (3.38)$$

Il est possible de résoudre le système d'équations différentielles découplées en considérant les modes indépendants :

$$\eta_i = \eta_{i,r} e^{\lambda_i t}. \quad (3.39)$$

L'équation 3.39 associe un vecteur propre et une valeur propre à chaque mode. Le vecteur propre caractérise la direction du mode dans l'espace des phases et la valeur propre caractérise le temps de relaxation du mode. Les temps caractéristiques s'expriment suivant la relation :

$$\tau_i(t) = \frac{-1}{\Re(\lambda_i)}, \quad (3.40)$$

où $\Re(\lambda_i)$ est la partie réelle de la $i^{\text{ème}}$ valeur propre de la Jacobienne \mathbf{J}_r . Le signe de la partie réelle de chaque valeur propre nous renseigne quant à l'évolution de la perturbation :

- $\Re(\lambda_i) > 0$, la perturbation augmente exponentiellement, il s'agit d'une perturbation instable.
- $\Re(\lambda_i) = 0$, la perturbation n'évolue pas.
- $\Re(\lambda_i) < 0$, la perturbation est amortie.

Le nombre de degrés de liberté du problème physique est lié au nombre de valeurs propres nulles. L'évolution du système chimique est contrainte par la conservation des bilans atomiques, l'enthalpie totale et la pression. Le système chimique exprimé dans la base de dimension $N_s + 2$ évolue en fait dans un simplexe de dimension $N_s + 2 - (N_a + 2)$, avec N_a le nombre d'atomes différents considérés dans le mélange. Le nombre de valeurs propres nulles est donc égal à $N_a + 2$. D'un point de vue dynamique, les trajectoires définies par les coordonnées de $\vec{\psi}$ sont contraintes d'évoluer dans un plan défini par les bilans atomiques, l'enthalpie totale (sensible et de formation) et la pression. En d'autres termes la trajectoire est contenue dans le plan défini par la fraction de mélange. Nous pouvons ajouter à cette étude des temps caractéristiques que la partie imaginaire de chaque valeur propre (si elle est non nulle) détermine la fréquence d'oscillation autour du point de référence.

Maas et Pope [83] ont appliqué cette étude des temps caractéristiques à la combustion. Les auteurs ont montré que dans l'espace des phases⁶, il existe une variété attractrice de faible dimension vers laquelle convergent toutes les évolutions possibles du système. Concrètement, si

6. On parle d'espace des phases lorsque l'évolution des grandeurs thermodynamiques n'est pas représentée en fonction du temps ou de l'espace mais dans un espace défini par des grandeurs thermodynamiques et/ou chimiques.

le système chimique évolue dans un espace qui contient cet attracteur, alors l'évolution de ce système va très vite évoluer vers cet attracteur. D'un point de vue géométrique les trajectoires définies, dans l'espace des phases, par les composantes de $\vec{\psi}$ convergent après un délai très court vers une trajectoire bien définie : la variété attractrice. Dès lors qu'une solution a convergé sur la variété attractrice elle ne la quittera plus. Une variété attractrice est représentée sur les figures 3.6. Ces figures illustrent le fait que les trajectoires collapsent sur des temps courts le long d'une variété 1D. Dès lors que cette variété existe, il s'avère superflu de calculer l'évolution

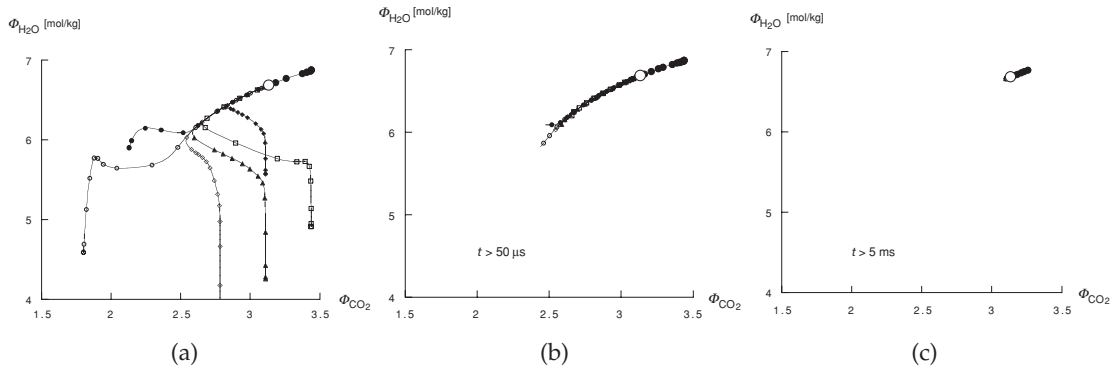


FIGURE 3.6: a) Evolutions de différentes compositions dans l'espace des phases [111], les coordonnées sont exprimées en fractions massiques pondérées : $\Phi_i = Y_i/W_i$. Ces compositions partagent toutes le même équilibre thermodynamique noté par un rond blanc. b) Evolutions des compositions représentées pour $t > 50 \mu\text{s}$. c) Evolutions des compositions représentées pour $t > 5 \text{ ms}$.

de tous les radicaux et des espèces intermédiaires. Seule la connaissance de cette variété est nécessaire pour connaître l'évolution du système. Concrètement, dans le contexte d'une combustion méthane/air à pression atmosphérique, si les temps de perturbation du système (temps introduit par le mélange) sont supérieurs à $50 \mu\text{s}$ alors seule la connaissance de l'attracteur 1D est requise pour connaître l'évolution du système. Dans le cas extrême où les temps de perturbation du système sont supérieurs à 5 ms , alors la tabulation de l'équilibre thermodynamique permet à lui seul de connaître l'état du système. Ce contexte correspond à l'état de chimie infiniment rapide décrit par Burke et Schumann [21]. L'existence d'un attracteur de faible dimension se traduit mathématiquement par une fréquence de coupure (dans le spectre des valeurs propres) au delà de laquelle tous les processus sont associés à des fréquences très élevées vis-à-vis de la fréquence de coupure. Les phénomènes physiques associés à ces fréquences élevées convergent sur l'attracteur sur des temps extrêmement courts. On considère alors que ces processus chimiques peuvent être découplés des processus chimiques lents ou encore des phénomènes dus aux transports diffusifs (voir la figure 3.5). Les processus chimiques les plus rapides sont donc déterminés en fonction des processus chimiques les plus lents : $\vec{\psi}_f = f(\vec{\psi}_s)$. Le système chimique 3.33 peut se réécrire de la façon suivante :

$$\begin{cases} \vec{\psi}_f = f(\vec{\psi}_s) \\ \frac{d\vec{\psi}_s}{dt} = \vec{F}(\vec{\psi}_s), \end{cases} \quad (3.41)$$

où l'indice "f" et "s" désignent respectivement les processus rapides et lents. Les processus les plus rapides n'étant pas résolus dans le système 3.41, sa raideur en est réduite d'autant. La dimension de l'attracteur dépend du nombre de valeurs propres inférieures à la fréquence de coupure. Une démonstration analytique simple mettant en évidence le processus de décorrélation des temps rapides et lents est proposée par Singh *et al.* [120]. Les hypothèses d'équilibres partiels et la méthode ILDM présentent des analogies, elles considèrent que certains processus rapides sont à l'équilibre⁷. C'est en ce point que la méthode ILDM présente des similitudes avec les modèles d'équilibres partiels ou stationnaires. Les processus considérés à l'équilibre par la méthode ILDM évoluent avec l'attracteur et donc évoluent dans le temps tandis que les processus considérés à l'équilibre selon les méthodes de réduction de type chimique sont à l'équilibre pour l'ensemble des conditions rencontrées [31]. La méthode ILDM est une méthode fiable pour l'étude des systèmes dynamiques, cette méthode ne nécessite pas de valeur arbitraire. Cependant les valeurs propres du système évoluent temporellement, c'est pourquoi l'attracteur mis en évidence par Mass et Pope n'est valable que pour une échelle de temps caractéristique. Il est nécessaire d'évaluer la dimension de l'attracteur et les temps de convergence sur l'attracteur à différents instants afin d'appréhender la dynamique globale du système étudié. Pour conclure, la méthode ILDM permet de distinguer les différents temps caractéristiques des cinétiques chimiques. Elle fut initialement appliquée à la cinétique de la combustion, et fut ensuite étendue à des domaines aussi variés que la bio-chimie [123], la cinétique des enzymes [44] ou encore la cinétique atmosphérique [79].

3.2.2.3 La tabulation de la chimie

La méthode ILDM est une méthode précise de résolution de la cinétique chimique. Moyennant le transport de variables de progrès et de la fraction de mélange elle permet de rendre compte des propriétés de l'attracteur tabulé. Cependant, le calcul *a priori* de la variété attractrice représente une difficulté importante dans l'établissement d'un calcul ILDM [48]. De plus si l'on s'intéresse aux temps chimiques faibles, la dimension de la variété attractrice augmente drastiquement. Dès lors la tabulation de la variété n'est plus possible. Le manque d'information dans les zones à faible température est comblé par une hypothèse de linéarisation, voir la figure 3.7. Cette hypothèse engendre des erreurs significatives sur les vitesses de flamme. C'est pour cette raison que les mécanismes responsables de l'auto-inflammation ou encore des effets de propagation de flamme ne peuvent être considérés avec la méthode ILDM. Une méthode a été proposée simultanément par Gicquel *et al.* [47] et van Oijen *et al.* [128] afin de simplifier drastiquement la réponse de flamme tabulée. Cette méthode dénommée Flamelet Prolongation of ILDM (FPI) ou Flamelet Generated Manifold (FGM)⁸ permet de combler le manque d'information dans les régions à faible température. Ces deux méthodes s'appuient sur l'approche des flammelettes introduite par Bradley [20] en 1988. Le but de la méthode FPI est d'étendre la variété tabulée aux temps chimiques les plus courts. Pour ce faire les réponses de flamme sont projetées dans un espace réduit : par exemple une variable de progrès et une fraction de mélange. La variété tabulée n'est plus obtenue à partir de l'étude des valeurs propres du système chimique mais elle correspond à une réponse de flamme d'un problème canonique tel que les flammes de pré-mélange, les flammes de diffusion ou encore les PSR. Il est alors possible

7. Les valeurs propres faibles, ou sous le seuil de tolérance, sont considérées comme nulles.

8. Dans la suite de ce manuscrit ces deux modèles identiques seront confondus dans l'appellation FPI.

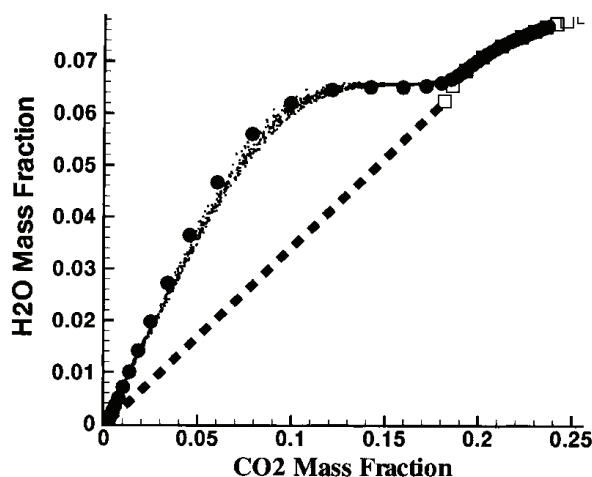


FIGURE 3.7: Comparaison des réponses de flamme obtenue avec FPI (cercles noir), ILDM (carré vide) et une flamme de pré-mélange turbulente CO/H₂/air (points noir). Illustration tirée des travaux de Gicquel *et al.* [47].

de décrire le comportement de la chimie sur les temps caractéristiques de la variable de progrès, temps qui sont responsables des phénomènes de propagation de flamme ou des phénomènes d'auto-allumage. Cependant, notons que si ILDM est une méthode qui dérive d'une étude mathématique du système chimique, FPI adopte une approche plus pragmatique de la combustion et ne dispose d'aucune base mathématique [32]. Le formalisme FPI fait l'hypothèse d'une analogie entre le front de flamme et une flamme laminaire, sa structure ne dépend plus des conditions locales de l'écoulement et peut donc être calculée *a priori* d'où l'appellation de chimie tabulée. Les méthodes de tabulation de la chimie ont été appliquées à un large éventail de configuration :

- La tabulation de la chimie dans le régime de combustion partiellement pré-mélangé se fait en fonction d'une variable de progrès pour une gamme de fraction de mélange [47, 128]. Fiorina [41] propose de tabuler les réponses de flamme en fonction de l'enthalpie pour les cas non-adiabatiques.
- Les processus d'auto-inflammation peuvent également être capturés moyennant l'ajout d'un nouveau paramètre, le temps de résidence par exemple [66].
- Des flammes de diffusion ont été calculées avec une méthode de tabulation similaire. Les réponses de flammes sont alors tabulées en fonction de la fraction de mélange et de son taux de dissipation scalaire stœchiométrique [104].

Dans le cadre de cette thèse, seule la tabulation de flamme canonique de pré-mélange a été entreprise. En pratique le calcul de flamme 1D est effectué pour une enthalpie, une pression et une gamme de richesse. Les profils des espèces et les propriétés thermodynamiques sont extraits et tabulés en fonction d'une variable de progrès, notée Y_c . La variable de progrès est une variable qui est construite à partir d'une combinaison linéaire d'espèces. Pour que PFI se montre précis il faut que la variable de progrès satisfasse deux conditions. Il doit exister une relation bijective entre la variable progrès et l'espace. Ceci afin qu'à chaque valeur de la variable de progrès il ne corresponde qu'un unique état du système chimique. Il est également nécessaire

que la variable de progrès évolue sur les mêmes temps caractéristiques que les phénomènes modélisés par FPI. Si cette condition n'est pas vérifiée ces phénomènes ne seront pas pris en compte. Le suivi de la combustion *via* une variable de progrès a pour effet un dé-raïdissement des termes sources chimiques (Figure 3.8). La méthode FPI bénéficie de nombreux avantages,

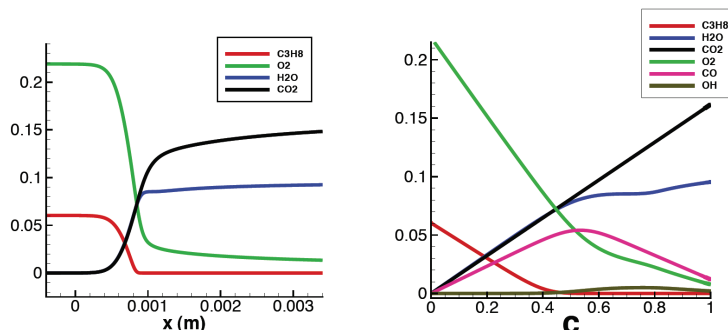


FIGURE 3.8: Projection d'une flamme stœchiométrique propane/air dans l'espace physique et dans l'espace des phases ($Y_c = Y_{CO}$). Illustration tirée de la thèse de Vicquelin [135].

outre son faible coût de calcul, les propriétés thermodynamiques et de réactivité du mélange sont tabulées en considérant une cinétique chimique complexe. Cette méthode s'avère être très précise lorsqu'elle est appliquée aux régimes de combustion qui correspondent aux flammes canoniques tabulées.

3.3 Les modèles de combustion turbulente

Les équations qui régissent les écoulements turbulents font intervenir un grand nombre d'espèces ainsi que la résolution d'un système non-linéaire. Une difficulté supplémentaire vient du fait que le front de flamme ne peut être résolu spatialement par les maillages LES. De nombreux modèles ont été développés dans l'optique de permettre la modélisation de la combustion dans ces conditions. Dans la section suivante, les deux modèles de combustion utilisés lors de cette thèse sont présentés. La première approche consiste à épaissir artificiellement le front de flamme pour permettre sa résolution sur le maillage. Ce modèle est appelé Thickening Flame LES (TF-LES) [3, 26, 75]. La deuxième approche consiste à présumer la forme de la PDF de sous maille et de filtrer les termes sources. Les deux approches présentées dans cette section correspondent aux approches utilisées dans le cadre de ces travaux de thèse et ne sont pas exhaustives.

3.3.1 Modèle de flamme épaissie

Dans la plupart des calculs réactifs, l'épaisseur de flamme laminaire est inférieure à la taille de maille. Afin de permettre le calcul de ce front de flamme sur un maillage (LES ou même DNS) le modèle TF-LES consiste en l'épaississement artificiel du front de flamme. Williams [141] relie la vitesse de flamme laminaire à l'épaisseur de flamme et au coefficient de diffusion :

$$S_L^0 \propto \sqrt{\lambda_{th} A}, \quad (3.42)$$

où A est le coefficient pré-exponentiel de la réaction globale de combustion. Dès lors il est possible d'épaissir le front de flamme par un facteur \mathcal{F} . Pour cela il suffit de diviser les termes sources chimiques par \mathcal{F} et de multiplier la diffusion thermique et la diffusion moléculaire par \mathcal{F} . L'épaississement peut être constant [26] ou calculé dynamiquement [76]. L'expression de l'épaississement n'est pas détaillée dans cette section, le lecteur est invité à lire les articles originaux [26, 76]. L'inconvénient de cette méthode est que les échelles inférieures à $\mathcal{F}\delta_L^0$ ne peuvent plisser le front de flamme. La vitesse de consommation de fuel étant proportionnelle à la surface de flamme, il s'ensuit un manque de réactivité. Afin de pallier à celui-ci, une fonction d'efficacité \mathcal{E} a été introduite. Les termes influencés par le modèle de flamme épaissie sont donc : la diffusion thermique, la diffusion des espèces ainsi que les termes sources chimiques. Dans le cadre de cette thèse le modèle de flamme épaissie a été utilisé associé à un solveur compressible. Les équations alors résolues sont les équations 2.91 à 2.94 auxquels quatre termes sont modifiés :

- La diffusion des espèces \bar{D}_k :

$$\bar{D}_k \rightarrow \mathcal{E}\mathcal{F}\bar{D}_k \quad (3.43)$$

- La diffusion de la chaleur $\bar{\lambda}_k$:

$$\bar{\lambda}_{th} \rightarrow \mathcal{E}\mathcal{F}\bar{\lambda}_{th} \quad (3.44)$$

- Les termes sources chimiques $\bar{\omega}_k$:

$$\bar{\omega}_k \rightarrow \frac{\mathcal{E}\bar{\omega}_k}{\mathcal{F}} \quad (3.45)$$

- Le taux de dégagement de chaleur $\bar{\omega}_T$:

$$\bar{\omega}_T \rightarrow \frac{\mathcal{E}\bar{\omega}_T}{\mathcal{F}} \quad (3.46)$$

Dans le cadre de ces travaux de thèse, le formalisme TF-LES a été utilisé en association à une cinétique chimique analytique, une cinétique chimique qui considère deux réactions chimiques. Le choix de la cinétique considérée correspond à deux attentes : il faut que l'évolution de chaque espèce puisse être résolue sur le front de flamme épaissie et que les termes sources chimiques puissent être calculés de façon explicite. Pour ces deux raisons, la cinétique chimique est donc souvent limitée à une cinétique chimique globale et analytique (deux ou trois étapes). Cette réduction drastique a pour effet la linéarisation du système chimique. La considération de cette cinétique chimique peut entraîner des erreurs significatives quant aux vitesses de flamme et aux températures de gaz brûlés pour les régimes riches [117, 115]. Boudier et al [15] propose une méthode dite PEA (Pre-Exponential Adjustment) afin de corriger le terme pré-exponentiel et calculer ainsi les bonnes vitesses de flamme en régime riche. Cependant la température des gaz brûlés dans ces régimes riches reste trop élevée. Ces erreurs sont certainement dues à la composition des gaz brûlés, qui en régime riche contiennent beaucoup d'espèces intermédiaires non considérés dans la cinétique globale.

3.3.2 PCM (Presumed Conditional Moment)

Les termes sources chimiques tabulés ou calculés selon une cinétique chimique analytique ne peuvent être utilisés directement dans le formalisme LES, où les échelles résolues sont de dimensions supérieures aux phénomènes physiques liés à la combustion. L'approche présentée

dans cette section est dite statistique, elle consiste à déterminer les grandeurs filtrées à partir d'une PDF (Probability Density Function). Avec l'approche statistique, le terme source (entre autres paramètres tabulés) s'exprime de la façon suivante

$$\tilde{\omega}_k(\vec{x}, t) = \int_{c^*=0}^{c^*=1} \int_{Z^*=0}^{Z^*=1} \dot{\omega}_k(Z^*, c^*) \tilde{\mathcal{P}}(Z^*, c^*; \vec{x}, t) dZ^* dc^*. \quad (3.47)$$

Le modèle consiste donc à fermer l'expression de la PDF qui peut-être transportée ou estimée à partir de grandeurs locales. De cette façon, il est possible d'extraire des tables laminaires les quantité filtrées nécessaires au calcul LES. Le modèle utilisé dans le cadre de cette thèse est PCM [36]. Notons que les modèles de transport de PDF ne sont pas abordés ici, mais sont discutés dans les travaux de Enjalbert [38] par exemple. L'expression 3.47 fait intervenir une PDF croisée sur c et Z . Une des hypothèse centrale du formalisme PCM est de supposer la décorrélation des distributions de c et Z : $\overline{\mathcal{P}}(c^*|Z^*) \approx \overline{\mathcal{P}}(c^*)$. Sous cette hypothèse, la relation exacte

$$\tilde{\mathcal{P}}(Z^*, c^*) = \overline{\mathcal{P}}(c^*|Z^*) \times \tilde{\mathcal{P}}(Z^*) \quad (3.48)$$

devient

$$\tilde{\mathcal{P}}(Z^*, c^*) = \overline{\mathcal{P}}(c^*) \times \tilde{\mathcal{P}}(Z^*). \quad (3.49)$$

Cette hypothèse permet de ne pas à avoir à modéliser une PDF jointe, elle a été discutée et validée par un calcul DNS d'une flamme non pré-mélangée [130]. Les relations 3.47 et 3.49 combinées conduisent à la relation

$$\tilde{\omega}_k = \int_{c^*=0}^{c^*=1} \int_{Z^*=0}^{Z^*=1} \dot{\omega}_k(Z^*, c^*) \overline{\mathcal{P}}(c^*) \mathcal{P}(Z^*) dZ^* dc^* \quad (3.50)$$

Le choix fait dans le cadre de ces travaux est de modéliser chacune des PDF par une β -PDF. Ce formalisme estime la forme de la PDF à partir des deux premiers moments du paramètre concerné. En prenant l'exemple de la fraction de mélange, la PDF s'écrit

$$\mathcal{P}(Z) = \frac{Z^{a-1}(1-Z)^{b-1}}{\int_0^1 (Z^* - 1)^{a-1}(1-Z^*)^{b-1} dZ^*} \quad (3.51)$$

où a et b sont deux coefficients déterminés selon

$$a = \tilde{Z} \left(\frac{1}{S_Z} - 1 \right) \quad \text{et} \quad b = a \left(\frac{1}{\tilde{Z}} - 1 \right). \quad (3.52)$$

Le terme S_Z qui apparaît dans l'équation précédente est la ségrégation de Z . Elle correspond à la variance (ou énergie de fluctuation de sous-maille) normalisée. Ces deux grandeurs sont reliées par la relation suivante

$$S_Z = \frac{Z_v}{\tilde{Z}(1-\tilde{Z})}. \quad (3.53)$$

Le formalisme est légèrement différent en ce qui concerne l'estimation de la ségrégation de \tilde{c} . Dans la pratique, c'est le transport de \tilde{Y}_c et de Y_{c_v} qui est assuré. \tilde{Y}_c varie entre zero et \tilde{Y}_c^{eq} , l'estimation de la ségrégation de \tilde{c} se fait par la relation

$$S_c = \frac{c_v}{\tilde{c}(1-\tilde{c})} = \frac{Y_{c_v}}{\tilde{Y}_c(\tilde{Y}_c^{eq} - \tilde{Y}_c)}, \quad (3.54)$$

avec

$$\tilde{c} = \frac{\tilde{Y}_c}{\widetilde{Y}_c^{eq}} \text{ avec } \widetilde{Y}_c^{eq} = \int_{Z^*=0}^{Z^*=1} Y_c^{eq}(Z^*) \mathcal{P}(Z^*) dZ^*. \quad (3.55)$$

L'estimation de la PDF par le formalisme des β -PDF n'est possible qu'une fois la variance connue. Il existe différentes approches pour calculer la variance :

- Le modèle "gradient" est un modèle algébrique qui estime la variance comme étant proportionnelle à la norme du gradient résolu

$$\phi_v = C_{te} \Delta |\nabla \tilde{\phi}|. \quad (3.56)$$

C'est l'hypothèse d'une PDF bi-modale qui permet d'obtenir ce formalisme [131]. La constante est généralement fixée à 0.18. Ce modèle est adapté aux grandes tailles de filtre.

- Veynante *et al.* [133] proposent une dépendance quadratique de la variance au gradient résolu

$$\phi_v = C_{te} \Delta^2 |\nabla \tilde{\phi}|^2. \quad (3.57)$$

Une étude récente de Moureau *et al.* [95] a montré qu'une valeur adéquate pour la constante de ce modèle est 0.08 pour les petites tailles de filtre.

- L'approche la plus utilisée réside dans la résolution d'une équation de transport pour chaque variance de paramètre tabulé. Ces équations font apparaître des termes de production et de dissipation de l'énergie de sous-maille [77, 37, 35]. Si le paramètre de tabulation est un scalaire réactif (\tilde{Y}_c par exemple), l'équation de la variance associée fait apparaître un terme de corrélation. Les équations pour les variances Y_{c_v} et Z_v sont les suivantes

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{Y}_c}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho} \tilde{u}_i \tilde{Y}_c}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\left(\frac{\bar{\mu}}{\text{Sc}} + \frac{\mu_t}{\text{Sc}_t} \right) \frac{\partial \tilde{Y}_c}{\partial x_i} \right) + \bar{\rho} \tilde{\omega}_{Y_c}, \quad (3.58)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{\rho} Y_{c_v}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho} \tilde{u}_i Y_{c_v}}{\partial x_i} = & \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\left(\frac{\bar{\mu}}{\text{Sc}} + \frac{\mu_t}{\text{Sc}_t} \right) \frac{\partial Y_{c_v}}{\partial x_i} \right) + 2 \frac{\mu_t}{\text{Sc}_t} \left| \frac{\partial \tilde{Y}_c}{\partial x_i} \right|^2 - 2 \frac{\mu_t}{\Delta^2 \text{Sc}_t} Y_{c_v} \\ & + 2 \bar{\rho} \left(\tilde{Y}_c \tilde{\omega}_{Y_c} - \tilde{\omega}_{Y_c} \tilde{Y}_c \right), \end{aligned} \quad (3.59)$$

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{Z}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho} \tilde{u}_i \tilde{Z}}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\left(\frac{\bar{\mu}}{\text{Sc}} + \frac{\mu_t}{\text{Sc}_t} \right) \frac{\partial \tilde{Z}}{\partial x_i} \right) \text{ et} \quad (3.60)$$

$$\frac{\partial \bar{\rho} Z_v}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho} \tilde{u}_i Z_v}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\left(\frac{\bar{\mu}}{\text{Sc}} + \frac{\mu_t}{\text{Sc}_t} \right) \frac{\partial Z_v}{\partial x_i} \right) + 2 \frac{\mu_t}{\text{Sc}_t} \left| \frac{\partial \tilde{Z}}{\partial x_i} \right|^2 - 2 \frac{\mu_t}{\Delta^2 \text{Sc}_t} Z_v. \quad (3.61)$$

Afin de résoudre les équations 3.58 à 3.61, il est nécessaire de tabuler certaines valeurs

$$\tilde{\omega}_{Y_c} = \int_{c^*=0}^{c^*=1} \int_{Z^*=0}^{Z^*=1} \dot{\omega}_{Y_c}(Z^*, c^*) \bar{\mathcal{P}}(c^*) \mathcal{P}(Z^*) dZ^* dc^* \quad (3.62)$$

$$\widetilde{Y}_c \tilde{\omega}_{Y_c} = \int_{c^*=0}^{c^*=1} \int_{Z^*=0}^{Z^*=1} Y_c(Z^*, c^*) \dot{\omega}_{Y_c}(Z^*, c^*) \bar{\mathcal{P}}(c^*) \mathcal{P}(Z^*) dZ^* dc^* \quad (3.63)$$

$$\widetilde{Y}_c^{eq} = \int_{Z^*=0}^{Z^*=1} Y_c^{eq}(Z^*) \mathcal{P}(Z^*) dZ^* \quad (3.64)$$

Dans la pratique le modèle PCM se traduit par la résolution d'une équation de transport supplémentaire par paramètre de tabulation, (ou une estimation locale de la variance), la connaissance du premier et du deuxième moment permet de déduire localement la forme de

la PDF et donc de déduire les termes sources filtrés à partir des termes laminaires. Pour une raison de coût de calcul, l'opération de filtrage n'est pas effectuée durant le calcul CFD mais *a priori*. Pour résumer les hypothèses sur lesquelles se base PCM sont au nombre de trois :

1. L'hypothèse de décorrélation des PDF [130].
2. L'hypothèse d'approximation de la PDF avec le formalisme d'une β -PDF. Notons que des travaux récents [95], basés sur l'étude d'une DNS filtrée à différentes tailles de filtre, on montre que le formalisme de la β -PDF est adapté dans la mesure où la ségrégation reste modérée : typiquement inférieur à 0.5.
3. L'hypothèse que l'estimation des variances est correcte.

Ce chapitre a permis de mettre en avant le challenge que représente le calcul d'écoulements réactifs turbulents. La cinétique chimique doit être réduite pour être couplée aux équations DNS ou LES. Différentes méthodes de réduction de la cinétique sont présentées, elles débouchent sur des modèles de combustion turbulente. Les deux modèles de combustion utilisés dans le cadre de ces travaux ont été présentés, ainsi que leurs extensions au formalisme LES. Cependant tous ces modèles sont développés pour la chimie carbonée, cinétique qui est à l'origine du dégagement de chaleur. Le chapitre suivant dresse l'état de l'art et les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse pour modéliser la chimie azotée, chimie responsable des émissions de NO_x .

Chapitre 4

La modélisation de la formation du monoxyde d'azote

Sommaire

4.1	Introduction	62
4.1.1	Etude phénoménologique de la formation du NO	63
4.1.2	Etat de l'art de la modélisation des émissions de NO _x	65
4.1.3	Conclusion	70
4.2	Etude de la chimie azotée dans un régime de dilution	71
4.2.1	Présentation du problème canonique	71
4.2.2	Influence de la composition initiale	74
4.2.3	Etude des effets transitoires	76
4.2.4	Conclusion intermédiaire	79
4.3	Etude du système chimique dans le formalisme ILDM	82
4.3.1	Mise en évidence d'un attracteur dans les GB	82
4.3.2	Détermination de la variable de progrès	85
4.3.3	Relaxation de la composition sur l'attracteur	85
4.3.4	Le post-traitement des espèces dans les gaz brûlés en régime de dilution	87
4.4	Conclusion sur l'étude de la chimie azotée	89
4.5	Le modèle NOMANI : Nitrogen Oxide emission model with one-dimensional MANifold	90
4.5.1	Validation sur des flammes 1D	92
4.5.2	Ecriture du modèle dans un contexte LES	94

4.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la cinétique chimique et la modélisation des NO_x. Dans un premier temps, il dresse un bref descriptif des principaux mécanismes réactionnels responsables des émissions de NO_x. Ce chapitre se poursuit par une étude de la chimie azotée dans un régime de dilution. Cette étude met en avant une propriété intrinsèque à la chimie azotée et conduit à l'écriture d'un modèle pour la prédiction des émissions de NO_x. Les limites de ce modèle sont évaluées par une étude des temps caractéristiques de la chimie. Ce modèle est

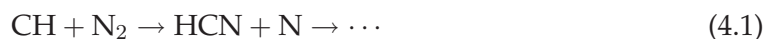
validé par le calcul de flammes 1D et est étendu au formalisme LES. Finalement une méthode de réduction de la table chimique dédiée au monoxyde d'azote est proposée et l'extension du modèle au cas non-adiabatique est discutée.

4.1.1 Etude phénoménologique de la formation du NO

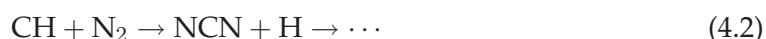
Cette section expose les principaux mécanismes responsables de la formation du NO. Cette section n'est pas exhaustive, des revues plus détaillées peuvent être consultées dans la littérature [34, 53, 92]. Ces mécanismes réactionnels peuvent être catégorisés en deux familles qui évoluent chacune sur des temps caractéristiques différents. La première catégorie regroupe les processus qui évoluent exclusivement sur les temps caractéristiques de la chimie carbonée. Deux voies de formation principales sont connues : le "prompt-NO" (NO précoce) et le "fuel-NO". Ces mécanismes sont le produit d'un couplage entre la chimie carbonée et la chimie azotée. Ce couplage rend difficile la connaissance et la description de ces deux mécanismes. Ces chemins réactionnels sont mal connus et sont encore sujets à discussion dans la littérature. La seconde catégorie regroupe tous les processus qui continuent d'évoluer une fois les espèces carbonées à l'équilibre. Ces mécanismes ont tous une forte dépendance en température et font l'objet d'un consensus dans la communauté scientifique.

4.1.1.1 Le NO du front de flamme (FF)

- C'est Fenimore [39], qui en premier a observé la formation de NO dans le front de flamme. En effet, il observa que le taux de NO ne s'annule pas en effectuant des mesures proches du front de flamme. Le mécanisme de Fenimore résulte de la dégradation du N_2 par les produits de combustion et notamment le radical CH. La première description [13] de ce mécanisme fait état de l'intervention du radical HCN :



Cependant des études récentes [4, 69, 71] suggèrent que le radical précurseur du NO dans le front de flamme est le HCN :



C'est en raison de ce couplage que le prompt NO est formé sur les temps caractéristiques de la chimie carbonée. Les temps caractéristiques vont de 10^{-4} s pour une combustion à 10 bar à 10^{-2} s pour une combustion à pression atmosphérique. De nombreux auteurs [10, 49] ont spécifié l'importance de prendre en compte le taux de prompt NO pour les régimes de combustion riches, même à faible température c'est-à-dire $T < 1100K$.

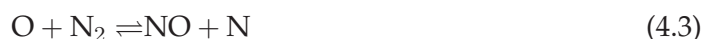
- Le fuel-NO concerne le NO produit suite à la dégradation de carburant contenant des liaisons azotées. Ceci est le cas de la combustion du charbon par exemple (le charbon le plus propre contient au moins 1% d'azote en nombre d'atomes). L'azote contenu dans le fuel s'évapore durant le processus de gazéification et mène à la formation de monoxyde d'azote. Ces processus ne sont pas abordés dans cette section puisque les fuels considérés dans le cadre de ces travaux sont le méthane et le kérosène et aucun de ces fuels n'est composé d'azote. La composition du kérosène retenue par Luche et considérée dans le cadre de ces travaux est référencée dans le tableau 4.1 :

n-décane C ₁₀ H ₂₂	n-propylcyclohexane C ₉ H ₁₂	n-propylbenzène C ₉ H ₁₈
74 %	15 %	11 %

TABLE 4.1: Composition modèle du kérosène selon Luche [80], en pourcentages molaires

4.1.1.2 Le NO_x des gaz brûlés (GB)

- La majeure partie des NO_x est formée dans les gaz brûlés sur des temps caractéristiques allant jusqu'à la seconde. Dans ce régime particulier, le mécanisme prédominant est le mécanisme de Zel'Dovich [145] :

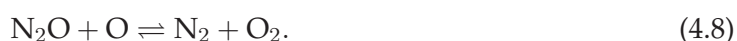


Ce mécanisme est étendu en incluant l'espèce OH pour former le mécanisme de Zel'Dovich étendu [33] :



Le NO produit selon le mécanisme de Zel'Dovich étendu est communément appelé le NO thermique. Ce processus menant à la dégradation du dioxygène et du diazote de l'air a une très forte sensibilité à la température. Cette propriété est due à l'énergie d'activation importante de la réaction 4.3, elle-même due à la liaison triple de la molécule de diazote.

- Le mécanisme du N₂O [142, 85] complète le mécanisme de Zel'Dovich à travers les réactions suivantes :



Correa [27] a mis en évidence l'importance de ce mécanisme pour la combustion pauvre dans les chambres de combustion aéronautiques.

- Bozzelli *et al.* [18] décrivent le mécanisme *via* le NNH selon les deux étapes :



- La production de NO₂ a lieu exclusivement dans les gaz brûlés et dérive de la production de NO :



Cette étude phénoménologique montre deux aspects importants quant à la formation des NO_x . Les processus menant à leur formation sont complexes de par le couplage avec la chimie carbonée et de par l'évolution du NO selon deux temps caractéristiques. Ce sont ces deux caractéristiques qui rendent la prédiction des émissions d'oxydes d'azote difficile. La disparité des temps caractéristiques peut être mise en évidence lorsque l'évolution de monoxyde d'azote est représentée en fonction d'une variable de progrès basée sur les espèces carbonées (Figure 4.1). Notons par ailleurs que les temps de résidence dans les chambres de combustion

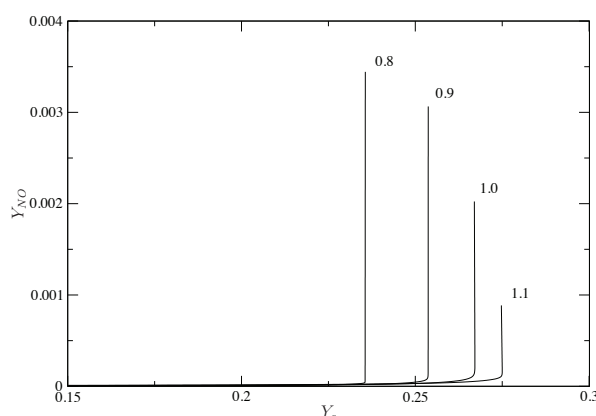


FIGURE 4.1: Evolution de Y_{NO} en fonction de la variable de progrès : $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2} + Y_{H_2O}$, pour différentes richesses.

aéronautiques sont toujours plus faibles que le temps de mise à l'équilibre de la chimie [74]. Dans ce contexte, la prise en compte du NO formé dans le front de flamme semble importante. Le NO formé dans le front de flamme est défini dans ces travaux de thèse comme étant le taux de NO à un avancement égale à 0.99.

$$Y_{NO}^{PR} = Y_{NO}(c = 0.99) \quad (4.15)$$

L'évolution du NO produit dans le front de flamme relativement au NO à l'équilibre est représenté sur la figure 4.2 pour différentes richesses.

4.1.2 Etat de l'art de la modélisation des émissions de NO_x

Les oxydes d'azote considérés durant ces travaux de thèse sont le NO et le NO_2 . Cependant, du fait que les NO_x émis par une flamme 1D à l'équilibre sont composés à 90% de NO et que les mesures de NO_2 sont rares dans la littérature, les modèles présentés dans la littérature concernent quasi exclusivement le NO. D'autre part, la non-linéarité en température et en richesse des mécanismes chimiques décrits précédemment rend obligatoire la résolution de la cinétique chimique en prenant en compte les effets de mélange. C'est pour cette raison que tous les modèles de prédiction du NO sont basés sur une équation de transport du NO. Le pionnier en matière de prédiction d'émission de NO est Bowman [17] qui proposa le premier modèle en 1975. La démarche de Bowman consiste à simplifier la cinétique du NO avec les méthodes de réduction du type chimique vues dans la section 3.2 du chapitre 3. Bowman considère uniquement le mécanisme de Zel'Dovich étendu. Dans ce contexte l'évolution temporelle de NO d'un

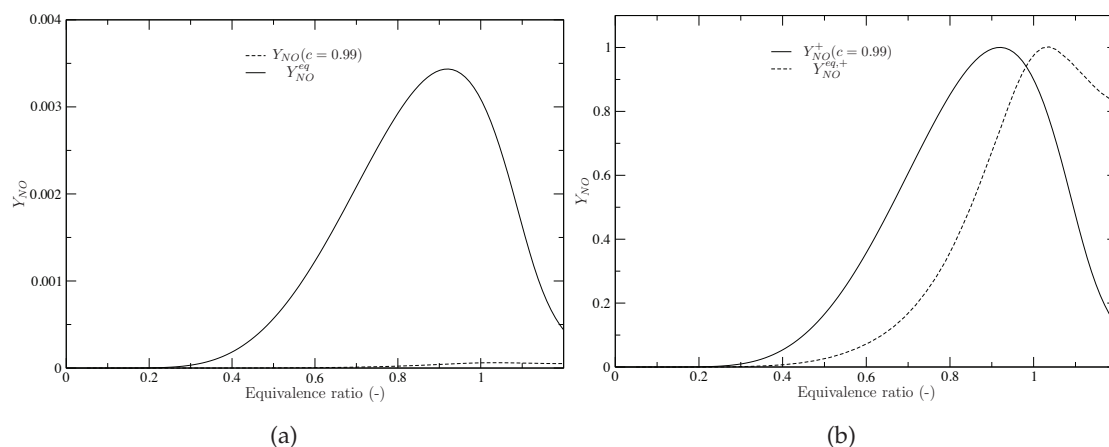


FIGURE 4.2: Représentation du NO produit dans le front de flamme ($Y_{NO}(c = 0.99)$) et du NO à l'équilibre thermodynamique, pour une flamme méthane/air à pression atmosphérique. a) Valeurs non-normalisées. b) Les quantités sont normalisées par leurs valeurs maximales.

système homogène s'écrit :

$$\frac{d[NO]}{dt} = k_1[N_2][O] - k_{-1}[N][NO] + k_2[N][O_2] - k_{-2}[O][NO] + k_3[N][OH] - k_{-3}[H][NO] , \quad (4.16)$$

avec k_i la constante de vitesse directe et k_{-i} la constante de vitesse inverse de la $i^{\text{ème}}$ réaction du mécanisme de Zel'dovich (i allant de 1 à 3). Moyennant l'hypothèse que le radical N est à l'état stationnaire et que la réaction 4.5 est à l'équilibre partiel, l'équation 4.16 devient :

$$\frac{d[NO]}{dt} = 2[O] \left\{ \frac{k_1[N_2] - \frac{k_{-1}k_{-2}[NO]^2}{k_2[O_2]}}{1 + \frac{k_{-1}[NO]}{k_2[O_2] + k_3[OH]}} \right\} . \quad (4.17)$$

Cette équation peut être résolue directement en supposant toutes les concentrations ainsi que les constantes de vitesse à l'exception du NO à l'équilibre. Cette équation peut être également simplifiée en considérant les concentrations de OH et NO faibles. Ce qui conduit à la relation simplifiée :

$$\frac{d[NO]}{dt} = 2k_1[N_2][O] . \quad (4.18)$$

La simplification drastique du système chimique rend la résolution directe du terme source de NO possible. Cependant ces deux fermetures sont très sensibles à la concentration du radical O. L'évaluation de ce radical n'est possible que si la chimie carbonée est à l'équilibre, ce qui a pour effet de rendre la prédiction du NO dans le front de flamme impossible. Löffler *et al.* [78] proposent une extension de cette méthode en incluant les mécanismes de production du NO par les voies réactionnelles du NNH et du N_2O . Ils proposent également de considérer la production de prompt NO comme étant proportionnelle à la concentration de fuel. Ce modèle donne de bons résultats dans les régimes de combustion où le prompt NO est négligeable, c'est-à-dire $\phi < 0.75$ et des temps de séjour importants.

Une approche alternative aux méthodes de réduction de types chimiques est la tabulation de la chimie. En 1988, Bradley *et al.* [20] introduisent la tabulation de la chimie dans un contexte

RANS, en utilisant la température normalisée comme variable de progrès. Cette approche est ensuite adaptée au suivi du NO en 1998 [19], les auteurs s'intéressent aux émissions de NO dans des régimes pauvres, *i.e.* $\phi \leq 0.75$. Dans ces régimes pauvres et sous l'hypothèse que la cinétique est loin de l'équilibre thermodynamique, le taux de production de NO dans les gaz brûlés peut être considéré comme constant. Dans ces conditions particulières, le terme source de NO peut être tabulé en fonction d'une unique variable de progrès. Pour ce faire le dernier point de la table ($c = 1$) est imposé de façon à correspondre au taux de production de NO dans les gaz brûlés. Notons que ce modèle n'a pas été confronté à une comparaison avec des mesures expérimentales. Un modèle similaire est proposé par Biagioli et Güthe [11] dans un contexte partiellement pré-mélangé et avec une comparaison aux valeurs expérimentales. Précisons que Bradley *et al.* [19] font également état d'une tentative de suivi du NO avec comme variable d'avancement la fraction massique de NO elle-même. Cette tentative se solde par une décorrélation du champ de NO et du champ de température, cette décorrélation est attribuée au faible couplage entre la chimie carbonée et la chimie azotée.

En 2002, Nafe et Maas [96] se proposent d'étudier la chimie azotée à travers le formalisme ILDM. La conclusion est que le NO ajoute un temps caractéristique au système chimique et donc ajoute une dimension supplémentaire à la table chimique. Sous le formalisme ILDM, il est nécessaire d'utiliser trois variables de progrès pour décrire la chimie carbonée, la considération de la cinétique azotée ajoute donc une 4^{ème} dimension à la table chimique. Pour éviter ce surcoût, les auteurs proposent de considérer la chimie azotée comme gelée durant l'établissement de la chimie carbonée. L'évolution du NO est donc assurée par une deuxième table chimique, le terme source du NO est tabulé en fonction de la fraction de mélange et de la fraction massique de NO elle-même. Notons que ce modèle n'a pas été testé couplé à un calcul CFD et que les auteurs préconisent l'emploi de ce modèle dans les régimes où le prompt est négligeable, puisqu'il n'est pas calculé.

Depuis 2007, de nouvelles approches basées sur la tabulation de la chimie donnent des résultats prometteurs quant à la prédiction des émissions polluantes. Ces modèles sont basés sur la tabulation de problèmes canoniques tels que les réacteurs homogènes, les flammes de diffusions laminaires ou encore les flammes de pré-mélanges [105, 101, 136]. Cette méthode se montre précise lorsqu'il s'agit de prédire le taux de dégagement de chaleur ou l'évolution des espèces qui évoluent sur des temps caractéristiques similaires à celui de la variable de progrès. Cependant, elle échoue lorsqu'il s'agit de prédire des concentrations d'espèces qui évoluent sur des temps plus importants comme le NO et le NO₂. De nombreux modèles ont été développés pour pallier à cette difficulté, chacun basé sur la tabulation de flamme non pré-mélangée ou pré-mélangée.

Le premier d'entre eux est le modèle de Ihme et Pitsch [55]. Les auteurs font état de leur incapacité à extraire l'information décrivant la formation du NO sur des temps importants. Le modèle proposé consiste en une équation de transport pour le NO. Ihme et Pitsch [55] illustrent leur démarche par l'exemple d'une réaction simple :



Le terme source de la réaction précédente peut être décomposé en un terme de production et un terme de destruction :

$$\dot{\omega}_{\text{NO}} = \dot{\omega}_{\text{NO}}^p + \dot{\omega}_{\text{NO}}^d. \quad (4.20)$$

En supposant que toutes les espèces ainsi que la température soient à l'équilibre, les termes sources de l'équation 4.20 se réécrivent selon :

$$\dot{\omega}_{\text{NO}}^p = \frac{W_{\text{NO}}}{\rho^{eq}} k_f^{eq} \left(\frac{\rho^{eq} Y_A^{eq}}{W_A} \right) \left(\frac{\rho^{eq} Y_B^{eq}}{W_B} \right) \quad (4.21)$$

$$\dot{\omega}_{\text{NO}}^d = -Y_{\text{NO}}^{eq} k_b^{eq} \left(\frac{\rho^{eq} Y_C^{eq}}{W_C} \right) \quad (4.22)$$

Ihme *et al.* linéarisent l'équation en faisant l'hypothèse que toutes les espèces évoluent sur des temps beaucoup plus court que le NO et donc que toutes les espèces (ainsi que la température) à l'exception du NO sont à l'équilibre thermodynamique. Le terme source du NO est alors fermé et s'écrit :

$$\dot{\omega}_{\text{NO}} = \dot{\omega}_{\text{NO}}^p + \dot{\omega}_{\text{NO}}^d \frac{Y_{\text{NO}}}{Y_{\text{NO}}^{eq}} \quad (4.23)$$

Les auteurs intègrent cette approche pour trois voies réactionnelles : la voie du prompt NO, la voie du NO thermique et la voie du N₂O. Ils insistent sur le fait que le modèle est consistant, en effet si $Y_{\text{NO}} = Y_{\text{NO}}^{eq}$ alors le terme source est nul. Cependant en appliquant ce modèle à la flamme turbulente de Sandia D [42], Ihme *et al.* surestiment le NO d'un facteur supérieur à cinq. Il est probable que cette surestimation provienne du calcul du prompt NO, en effet les constantes de vitesses sont tabulées en considérant la température comme étant à l'équilibre ce qui est une hypothèse forte pour l'estimation du prompt NO. Zoller *et al.* [146] attribuent cette surestimation au procédé de linéarisation qui ne permet pas la prise en compte des effets non-linéaires introduits notamment par l'espèce NO₂. Afin de prendre en compte ces effets, Zoller *et al.* suggèrent de tabuler le terme source de NO en permettant aux espèces azotées d'évoluer. Comme pour les travaux de Ihme, la tabulation se fait dans un contexte de tabulation de flammes non pré-mélangées, les termes sources de la chimie carbonée sont tabulés en fonction de la fraction de mélange, du taux de dissipation scalaire et d'un défaut d'enthalpie. La tabulation de l'évolution du NO est effectuée en calculant un PSR par condition rencontrée dans la table. Le PSR est initialisé avec les compositions d'espèces correspondant aux trois paramètres de tabulation, à l'exception des espèces azotées qui voient leurs fractions massiques initialisées à zéro et du N₂ qui est initialisé de manière à conserver le bilan atomique d'azote. Durant le calcul de chaque PSR toutes les espèces azotées peuvent évoluer, cependant la température ainsi que les espèces non azotées se voient artificiellement fixées. L'évolution du NO dans chaque PSR étant monotone croissante, le terme source de NO peut être tabulé avec une table 4D : $\dot{\omega}_{\text{NO}} = (Z, \chi, \Delta H, Y_{\text{NO}})$. D'après les auteurs, ce modèle doit être limité aux calculs de configurations où les taux de NO_x sont loin de l'équilibre ; car l'équilibre obtenu pour chaque condition de la table 3D ne correspond pas à l'équilibre thermodynamique. Cette différence s'explique par la contrainte qui est ajoutée au système chimique ; à savoir que les espèces non-azotées ainsi que la température ne sont pas autorisées à évoluer.

D'autres modèles de tabulation de la chimie reposant sur la tabulation de flammes de pré-mélanges ont été développés. Afin d'étendre la méthode FPI à la prédiction des espèces à l'évolution lente, Godel *et al.* [51] ainsi que van Oijen et de Goey [127] suggèrent d'incorporer la fraction massique de NO dans la définition de la variable de progrès. La variable de progrès selon Godel prend alors la forme suivante :

$$Y_c = Y_{\text{NO}} + Y_{\text{NO}_2} + Y_{\text{N}_2\text{O}} + Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2} + Y_{\text{N}_2} - Y_{\text{N}_2,0} , \quad (4.24)$$

Ce formalisme n'est cependant pas adapté à un couplage avec une β -PDF, les travaux de Godel [50] montrent que le modèle a une importante dépendance à la ségrégation de la variable de progrès. La région post flamme étant décrite sur les derniers pourcentages de la variable de progrès ; une ségrégation, même faible, pour un avancement élevé entraîne une évaluation du NO en considérant toute la région post-flamme. Ceci est illustré par la figure 4.3.

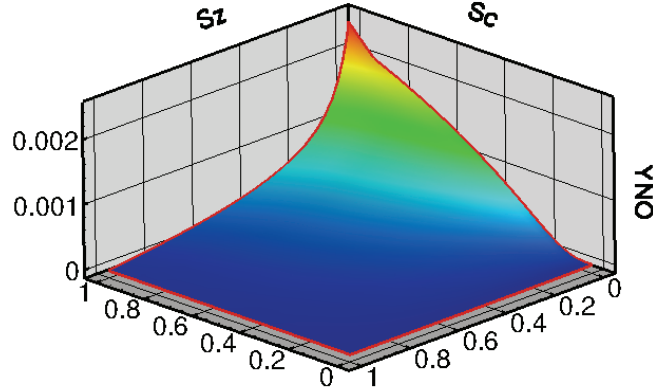


FIGURE 4.3: Surface $Y_{NO} = f(S_Z, S_c)$ pour $\tilde{c} = 0.87$ et $\tilde{Z} = Z_{st}$, illustration extraite de la thèse de Godel [50].

La variable d'avancement selon van Oijen prend elle la forme suivante :

$$Y_c = Y_{H_2} + Y_{H_2O} + Y_{CO_2} + \alpha Y_{NO} , \quad (4.25)$$

avec α une constante choisie arbitrairement. Le modèle de van Oijen et de Goey est le seul modèle présent dans la littérature qui ait été validé en comparaison à une flamme 1D laminaire. Ce modèle montre un excellent accord avec les calculs à cinétique complexe si $10^2 \leq \alpha \leq 10^3$. Ce modèle n'est pas étendu au formalisme LES, notons cependant que Savre [113] propose dans des travaux de thèse une fermeture inspirée de la β -PDF et adaptée à la variable de progrès définie par van Oijen et de Goey.

Ketelheun *et al.* [64] présentent un calcul comparatif de la méthode de Godel *et al.* et Ihme *et al.* sur le brûleur de Sydney [30]. Les deux approches donnent sur cette configuration des résultats similaires.

Vervisch *et al.* [132] proposent un nouveau modèle baptisé NORA ("NO Relaxation Approach"), qui s'inspire d'une idée originale de Michel [90]. Comme Bowman, les auteurs considèrent uniquement le mécanisme de Zel'Dovich. L'équation 4.16 peut être mise sous la forme :

$$\frac{d[NO]}{dt} = -A[NO] + B = \frac{[NO]^{eq} - [NO]}{\tau} , \quad (4.26)$$

avec

$$A = k_1[N] + k_{-2}[O] + k_{-3}[H] \text{ et} \quad (4.27)$$

$$B = [N](k_2[O - 2] + k_3[OH]) + k_{-1}[N_2][O] . \quad (4.28)$$

Les auteurs tirent avantage que les termes A et B ainsi que la température restent constants lorsque que l'on perturbe la fraction massique de NO d'un PSR à l'équilibre thermodynamique. Cette propriété assure une relaxation exponentielle de la fraction de NO vers sa valeur à l'équilibre. Sous ce formalisme, le NO est utilisé comme une variable de progrès. Mais

contrairement aux approches conventionnelles le terme source n'est pas tabulé, c'est un temps de relaxation qui est tabulé. Les auteurs montrent que cette description est adaptée à la condition que le régime ne soit pas trop riche et que la perturbation ne soit pas de l'ordre de Y_{NO}^{eq} . Ces deux limitations sont tout de même jugées d'influences mineures :

- Le NO produit par voie thermique est considéré comme négligeable dans les régimes riches, et donc une erreur sur son estimation s'avère être de faible importance.
- A l'initialisation $Y_{NO} = 0$ et donc $|\Delta Y_{NO}| = Y_{NO}^{eq}$. Dans ce cas le formalisme de NORA introduit des erreurs. Les auteurs tirent avantage du fait que le système chimique évolue très vite de façon à retomber sur une décroissance adaptée.

Les calculs des temps de relaxation sont effectués à partir de PSR à l'équilibre thermodynamique perturbé. Ce choix est motivé par le fait que le NO évolue sur des temps caractéristiques plus important que la chimie carbonée. Sous cette hypothèse, la chimie carbonée peut être considérée comme à l'équilibre thermodynamique. Afin de respecter le bilan atomique, Vervisch *et al.* introduisent un flux de dilution composé de diazote pur. La perturbation du bilan atomique dû à l'ajout de NO est répercutée sur la richesse du PSR ainsi que par un flux de dilution. Le temps de relaxation doit alors être tabulé en fonction de la richesse, de la pression, le flux de dilution et de la perturbation de NO : $\tau(\phi, T, P, Y_D, |\Delta Y_{NO}|)$. Knop *et al.* [67] améliorent le calcul de la composition du réacteur suite à la perturbation de façon à s'affranchir du flux de dilution et étendent le modèle NORA aux espèces N_2O et NO_2 . Un des avantages de cette approche est qu'il est possible de calculer l'évolution du NO pour un mélange dans des conditions hors des limites d'inflammabilité.

Depuis 2004, des calculs avec cinétique chimique complexe sont effectués sur des configurations turbulentes sous le formalisme RANS [107, 137, 65, 70]. Ces calculs transportent les 53 espèces contenues dans le GRI-mech 3.0 et résolvent les termes sources en considérant la cinétique chimique sans approximation. Ces calculs sont très coûteux (l'évaluation des termes sources coûte 90% du temps de calcul total [107]), c'est la raison pour laquelle ils sont possibles uniquement dans le formalisme RANS. Précisons tout de même que ces calculs offrent un excellent accord avec les mesures expérimentales, notamment en ce qui concerne la flamme de Sandia D [5, 42].

4.1.3 Conclusion

A la vue de l'état de l'art en matière de modélisation des oxydes d'azote, il semble nécessaire de développer une modèle qui réponde aux exigences multiples des motoristes :

- Un modèle qui doit considérer la totalité des mécanismes réactionnels. Il doit non seulement considérer les NO_x produits dans le front de flamme mais il doit être aussi capable de prendre en compte tous les chemins réactionnels dans le régime des gaz brûlés. Un moyen de s'assurer de cette propriété est de ne pas isoler une cinétique particulière mais de considérer le schéma réactionnel dans sa totalité comme un paramètre d'entrée.
- Le modèle doit être adapté à la chimie des mélanges méthane/air et kérosène/air.
- Le modèle doit avoir un formalisme adapté aux calculs LES.

Compte tenu du cahier des charges que le modèle doit satisfaire ; du grand nombre d'espèces impliquées dans la chimie azotée ; ainsi que du couplage entre la chimie carbonée et la chimie azotée ; la tabulation de la chimie paraît être la démarche la plus adéquate. Cependant, une particularité des chambres de combustion aéronautiques est la dilution des gaz brûlés par de l'air

frais. Cette dilution perturbe la chimie, notamment en diminuant la température et en augmentant la concentration d'espèces sensibles tel que l' O_2 , ceci avant que la chimie ait atteint l'équilibre. Dès lors il est important d'étudier la réponse du système chimique à la dilution. La section suivante présente une étude de la chimie azotée des gaz brûlés. Le but de cette section est de définir les paramètres de tabulation nécessaires afin d'estimer la production de NO dans les chambres de combustion aéronautiques.

4.2 Etude de la chimie azotée dans un régime de dilution

Une contrainte majeure dans le design d'une chambre de combustion aéronautique consiste à protéger les parois du tube à flamme ainsi que les pales de la turbine des poches de gaz trop chauds. Tous les procédés développés dans cette optique consistent à diluer les gaz chauds par de l'air frais. Du point de vue de la combustion, la dilution entraîne des gradients de Z dans la chambre de combustion. Ces gradients de Z ont une forte incidence sur la cinétique chimique car ils entraînent un changement de température et un changement de la composition du mélange. Prenons l'exemple du suivi lagrangien d'une particule fluide. L'impact de la dilution sur cette cellule fluide se traduit par l'intégration des termes diffusifs de Z sur la surface fermée de cette cellule fluide. De façon instantanée et locale, l'impact de la dilution sur une cellule fluide se traduit donc par : $dZ/dt < 0$. Tout particulièrement dans les configurations aéronautiques, le temps caractéristique de la dilution est inférieur au temps caractéristique de la chimie azotée :

$$\frac{dZ}{dt} \leq \frac{dY_{NO}}{dt}. \quad (4.29)$$

Dès lors, les approches conventionnelles de tabulation de la chimie qui font l'hypothèse que la cinétique chimie évolue plus vite que la perturbation du système n'est pas judicieuse pour la modélisation du NO. Afin de répondre aux exigences inventoriées dans la section précédente tout en tenant compte de la spécificité de la dilution, une étude de la chimie azotée diluée par de l'air frais a été entreprise. Cette étude est présentée dans les sections suivantes. elle a pour but d'extraire les paramètres nécessaires à la tabulation de la chimie lente du NO dans un régime de dilution.

4.2.1 Présentation du problème canonique

L'étude de la chimie azotée a été rendue possible par l'élaboration d'un problème canonique. Ce problème canonique prend la forme d'un PSR à pression constante. Les flux diffusifs sont négligés, l'hypothèse sous-jacente est que la chimie des gaz brûlés est pilotée par le mélange. Le calcul du PSR est effectué avec le solveur Cantera [52]. Les calculs présentés dans ce chapitre ont été effectués avec le schémas cinétiques GRI-Mech 3.0 [122]. Du point de vue de la thermodynamique, les chambres de combustion aéronautiques sont un problème à deux entrées. Chaque condition limite du calcul peut être déterminée par une relation linéaire entre ces deux entrées, ou conditions. La composition du PSR est construite selon le même procédé, à partir d'une condition pour le fuel :

$$Y_i = Y_i^{fu}, H = H^{fu}, Z^{fu} = 1, \quad (4.30)$$

et d'une deuxième condition pour l'oxydant :

$$Y_i = Y_i^{ox}, H = H^{ox}, Z^{ox} = 0. \quad (4.31)$$

Les conditions thermodynamiques de ces deux entrées, pour les calculs méthane/air, sont référencées dans le tableau 4.2. La pression est constante est égale à 10 bar, une pression proche des conditions de fonctionnement des chambres de combustion aéronautiques de petite taille.

	Fuel	Oxidizer
Y_{CH_4}	1.0	0.0
Y_{O_2}	0.0	0.2321
Y_{N_2}	0.0	0.7555
Y_{AR}	0.0	0.0124
$T_0[K]$	850.0	850.0
$H[J/g]$	-4659.3	-7.1

TABLE 4.2: Compositions du fuel et de l'oxydant pour les calculs méthane/air, T_0 est la température initiale.

La composition initiale ainsi que l'enthalpie initiale du PSR sont définies par les relations linéaires suivantes :

$$Y_i^{init} = ZY_i^{fu} + (1 - Z)Y_i^{ox}, \quad (4.32)$$

$$H^{init} = ZH^{fu} + (1 - Z)H^{ox}. \quad (4.33)$$

La variable d'avancement considérée dans ces travaux est définie selon : $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2} + Y_{H_2O}$. Rappelons qu'il est possible de normaliser la variable de progrès : $c = Y_c/Y_c^{eq}(Z)$. Cette variable d'avancement normalisée vaut zéro dans les gaz frais et un dans les gaz brûlés. Biagioli et Güthe [11] proposent de définir le prompt NO à partir de la variable de progrès normalisée, ils suggèrent que le prompt NO correspond à la quantité de NO produit à un avancement de 0.99. De cette façon plus de 93% du taux de dégagement de chaleur a été libéré pour des pressions allant de 1 bar à 30 bar. Dans ces travaux de thèse nous considérons que la condition $c \leq 0.99$ correspond à la condition front de flamme (FF), tandis que la condition $c > 0.99$ correspond à la condition des gaz brûlés (GB). Le problème canonique, schématisé sur la figure 4.4, correspond à un calcul de PSR orchestré selon les trois étapes suivantes :

1. Les propriétés du mélange initial sont déterminées par les équations 4.32 et 4.33. La composition du mélange s'auto-inflamme et évolue jusqu'à un avancement de $c = 0.99$.
2. Ensuite le mélange du PSR est dilué par un flux aux mêmes propriétés thermodynamiques que l'entrée d'oxydant. Le calcul de la chimie continue d'évoluer durant cette étape de dilution. La dilution se fait jusqu'à ce que la fraction de mélange du PSR atteigne une valeur déterminée par avance : Z_{min} . Précisons que la dilution se fait de manière un temps de dilution ou de mélange, noté τ_{dil} (s), constant. Le temps de dilution obéit à la relation :

$$\tau_{dil} = 1 / \left| \frac{dZ}{dt} \right|. \quad (4.34)$$

3. Finalement, la dilution cesse et le réacteur évolue à fraction de mélange fixe et égale à Z_{min} .

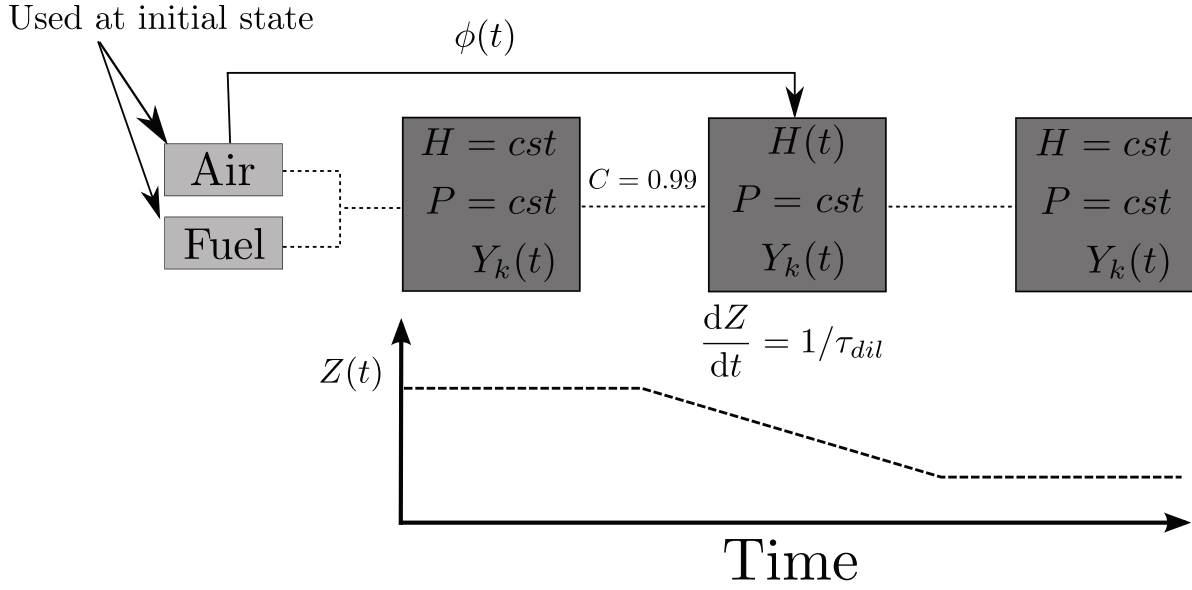


FIGURE 4.4: Représentation schématique du problème canonique.

Durant le calcul du PSR, les équations de conservation sont intégrées sans aucune approximation en ce qui concerne l'équation d'état ou les conditions limites. Cantera résout une équation pour chaque masse d'espèce k :

$$\frac{dm_k}{dt} = \sum_{\text{entrée}} \dot{m}_e Y_{k,e} - Y_k \sum_{\text{sortie}} \dot{m}_s + V W_k X_k \dot{\omega}_k, \quad (4.35)$$

ainsi qu'une équation pour l'énergie interne :

$$\frac{dU}{dt} = -P\dot{V} + \sum_{\text{entrée}} \dot{m}_e H_e - H \sum_{\text{sortie}} \dot{m}_s, \quad (4.36)$$

où V est le volume du PSR et $Y_{k,e}$ la fraction massique du composant k de la condition diluante. Une équation supplémentaire est résolue pour connaître le volume du PSR et fermer le problème. Les fractions massiques du mélange sont déduites par la relation $Y_k = m_k/m$. Il est possible d'exprimer la variation de la fraction de mélange en fonction de la masse injectée dans le PSR :

$$\frac{dZ}{dt} = \sum_k \alpha_k (Y_{k,e} - Y_k) \frac{1}{m_e} \frac{dm_e}{dt}, \quad (4.37)$$

avec $\alpha_k = \sum_j n_{kj} \cdot \nu_j$ et n_{kj} la quantité d'élément j (C,O, H ou N) contenue dans l'espèce k . ν_j est le coefficient stoechiométrique défini dans la section 3.1.1.3. Il est également possible de mettre en équation la dérivée temporelle des fractions massiques :

$$\frac{dY_k}{dt} = \underbrace{\dot{\omega}_k}_{\mathcal{A}} + \underbrace{\frac{Y_{k,e} - Y_k}{M_k} \frac{1}{m_e} \frac{dm_e}{dt}}_{\mathcal{B}}. \quad (4.38)$$

Nous remarquons que deux processus sont à l'origine de l'évolution des fractions massiques d'espèces. Le premier est la cinétique chimique qui intervient à travers le terme source chimique : terme \mathcal{A} . Le deuxième processus résulte de la dilution : le terme \mathcal{B} . Il est positif pour l'espèce k si $Y_{k,e} > Y_k$, ce qui est le cas si l'espèce k est diluante.

L'élaboration de ce problème canonique fut motivée par deux questions :

- Quel est l'impact d'un flux de diffusion sur l'évolution des espèces chimiques azotées ?
- Existe-il des paramètres de tabulation généraux qui permettent de tabuler la chimie du NO en tenant compte de la dilution ?

Le suivi de l'évolution de la composition chimique de ce problème canonique apporte les premières réponses à ces questions.

4.2.2 Influence de la composition initiale

Le problème canonique présenté précédemment permet de comparer l'évolution de la composition d'un mélange à iso-richesse mais avec des richesses initiales différentes. Le but de tels calculs est d'estimer l'influence de l'histoire du mélange sur l'émission de polluant. Cinq calculs différents sont présentés dans cette sous-section. Quatre de ces calculs correspondent à des mélanges dilués de façon à évoluer à la même fraction de mélange finale : $Z_{min} = 0.035$. La dilution de chacun de ces quatre PSR est effectuée avec la même intensité de dilution : $\tau_{dil} = 10$ s. Les fractions de mélange initiales de ces quatre PSR sont : 0.055 ; 0.5 ; 0.045 ; 0.04. Le cinquième PSR correspond à un PSR sans dilution, sa fraction de mélange initiale et finale est égale à $Z_{min} = 0.035$. L'évolution de chacun de ces cinq PSR est représentée sur la figure 4.5.

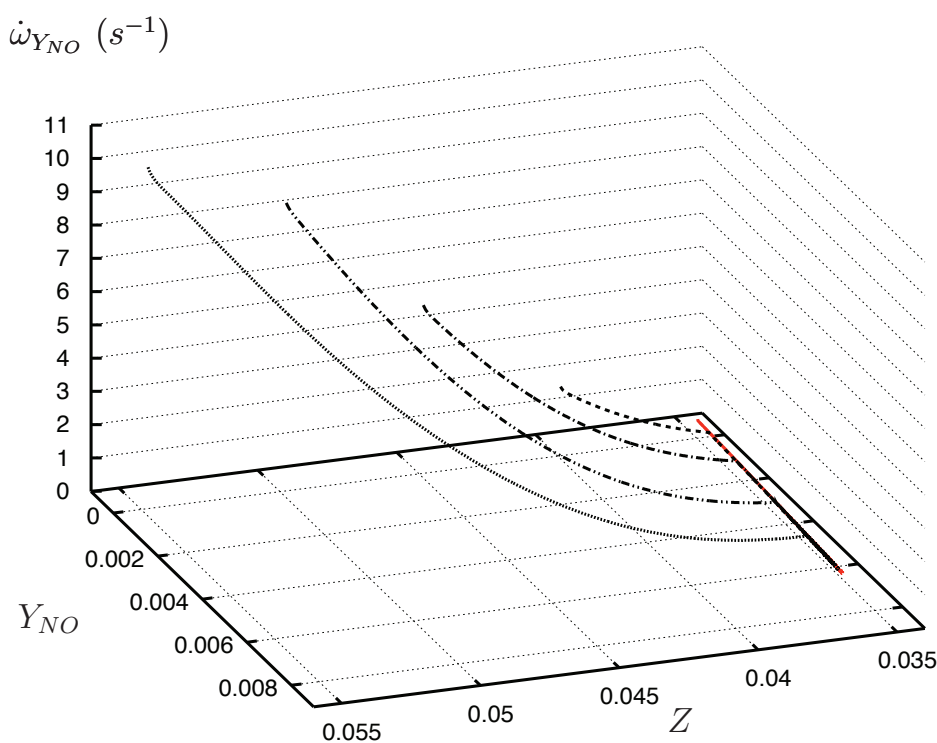


FIGURE 4.5: Evolution de la composition des cinq PSR dans l'espace des phases (Y_{NO} , Z , $\dot{\omega}_{NO}$). Trait rouge : trajectoire du PSR à fraction de mélange constante et égale à 0.035. Tiret noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.04$. Tiret point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.045$. Tiret point point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.05$. Points noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.055$.

Pour plus de visibilité les résultats illustrés sur la figure 4.5 sont représentés au travers des graphiques 2D 4.6. La figure 4.6(a) est une coupe opérée dans le plan $Z = Z_{min}$, tandis que la figure 4.6(b) est une projection des trajectoires dans le plan (Z, Y_{NO}) . Notons que la légende de ces deux graphiques est la même que celle de la figure 4.5. L'observation des trajectoires conditionnées au plan $Z = Z_{min}$ met en évidence le fait que toutes les trajectoires sont confondues, et ce quelque soit la richesse initiale du mélange. Nous sommes donc en mesure d'affirmer que l'influence de la richesse initiale est nulle si le problème est observé dans l'espace des phases $(Y_{NO}, Z, \dot{\omega}_{NO})$. L'appréhension de ces résultats est facilitée par l'observation de la figure 4.6(b). Nous pouvons remarquer sur cette même figure que les deux mélanges les plus riches révèlent que Y_{NO} peut diminuer pendant la phase de dilution tandis que $\dot{\omega}_{NO}$ est lui positif. Ce phénomène peut être appréhendé au regard de l'équation 4.38. Concernant la fraction massique de NO et les calculs présentés dans cette section, le terme \mathcal{A} de l'équation 4.38 est toujours positif tandis que le terme \mathcal{B} est lui constant et négatif (les espèces diluantes étant le N_2 , l' O_2 et l'AR). La fraction massique de NO diminue lorsque la solution approche l'équilibre thermodynamique et donc que le terme source diminue. Pour résumer, le signe de dY_{NO}/dt résulte d'une compétition entre la dilution et la production par voie chimique. Lorsque Y_{NO} augmente la chimie prend le pas sur le procédé de dilution. Et inversement lorsque Y_{NO} diminue c'est la dilution qui prédomine.

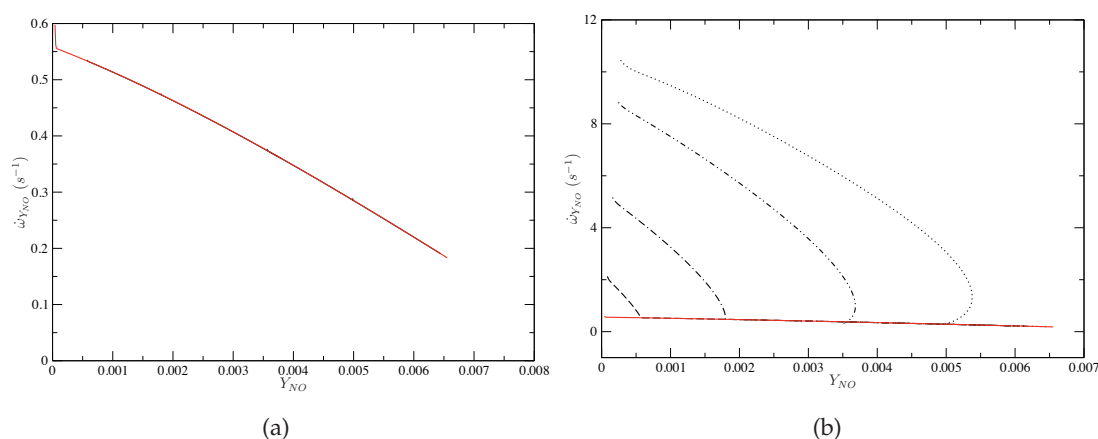


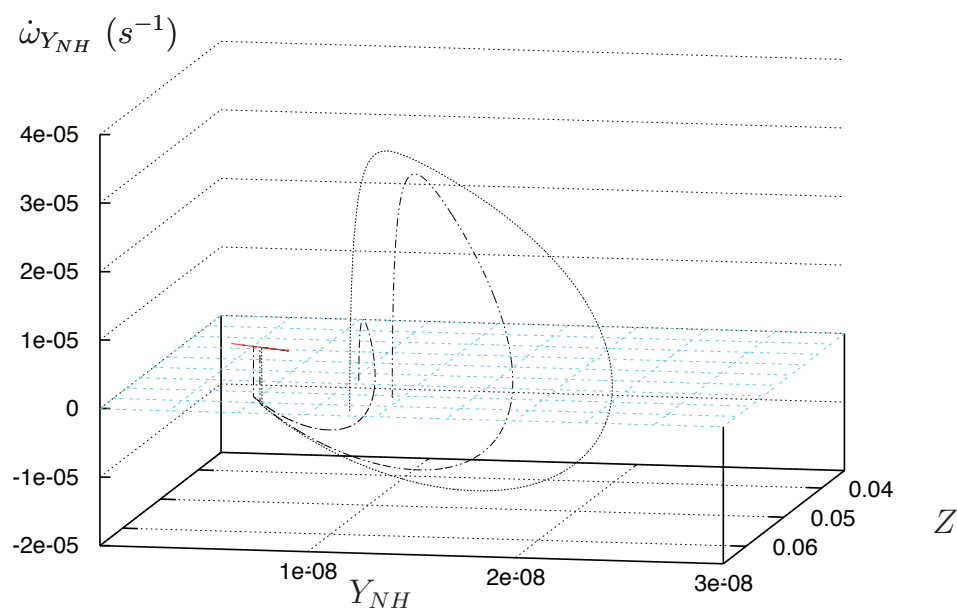
FIGURE 4.6: Représentations 2D des résultats de la figure 4.5. a) Coupe dans le plan défini par $Z = Z_{min}$. b) Projection dans le plan (Z, Y_{NO}) .

La même expérience peut être faite avec une autre espèce. L'espèce choisie est le NH, ce choix est motivé par le fait que cette espèce évolue sur le même temps caractéristique que le NO et qu'elle entre en compte dans un processus chimique important. Une différence notable entre la production de NO et la production de NH est que le NO est en proportion maximale à la stœchiométrie tandis que le NH est produit de façon plus importante pour les régimes riches, condition pour laquelle le radical H est en quantité plus importante. Pour cette raison, et dans un souci de clarté, des PSR ont été calculés pour étudier la production de NH. Ces richesses sont : 0.065 ; 0.60 ; 0.055 ; 0.050. Ces quatre PSR ont été dilués avec une intensité de dilution constante et égale à $\tau_{dil} = 10$ s. La fraction de mélange finale est $Z_{min} = 0.045$. La trajectoire d'un PSR évoluant à fraction de mélange fixée est également représentée sur la figure 4.7.

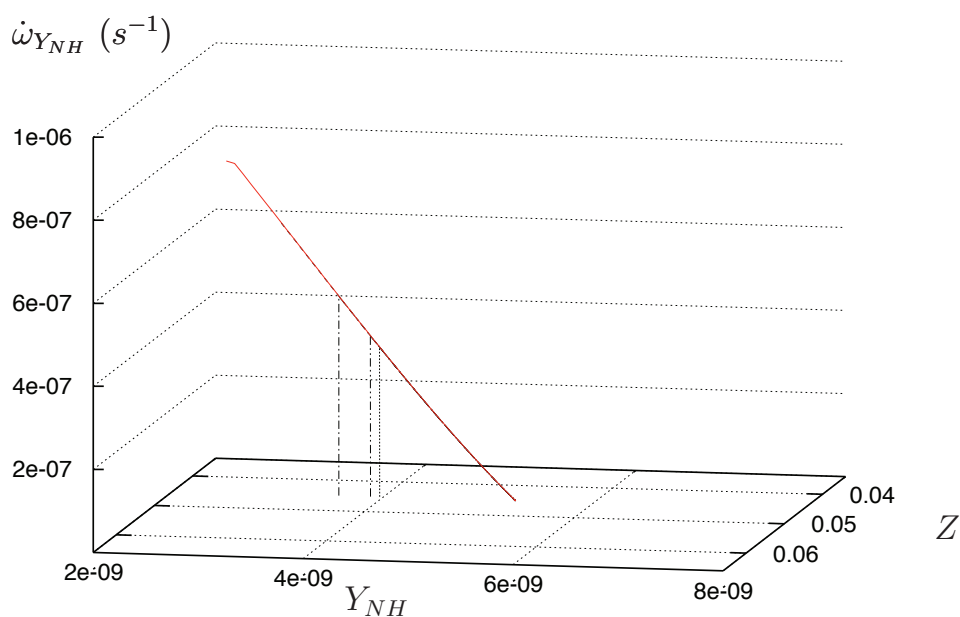
Les résultats observés dans l'espace des phases $(Y_{NH}, Z, \dot{\omega}_{NH})$ présentent des conclusions différentes. Si les compositions semblent converger sur la trajectoire du PSR non dilué, elles présentent des divergences sur les derniers instant à $Z = Z_{min}$. Ce phénomène est mieux observé sur les figures 4.8(a) et 4.8(b), lorsque les résultats sont conditionnés à $Z = Z_{min}$. Nous remarquons que dès lors que les résultats sont conditionnés à un temps égal à 10^{-6} s, la totalité des compositions se trouvent sur la trajectoire non-diluée. La différence observée entre les deux espaces des phases montre la faiblesse de l'étude menée dans cette sous-section. Nous nous sommes donc intéressé à l'étude de la chimie azotée durant la période de dilution. Cette étude est présentée dans la sous-section suivante.

4.2.3 Etude des effets transitoires

L'étude de la cinétique chimique durant la dilution a été étudiée avec le problème canonique présenté dans la section précédente, cependant un protocole différent a été imaginé. Les différents PSR ont été calculés avec la même condition initiale et la même fraction de mélange finale, néanmoins chaque PSR a été calculé avec une intensité de dilution différente. La fraction de mélange initiale est $Z_{init} = 0.055$ et la fraction de mélange finale est $Z_{min} = 0.035$. Les résultats de ce problème canonique sont comparés à des calculs de PSR effectués à fraction de mélange constante. Les résultats sont illustrés sur la Figure 4.9. La surface définie par les mélanges dilués coïncide avec les réponses obtenues sans dilution dans l'espace des phases $(Y_{NO}, Z, \dot{\omega}_{NO})$. L'évolution du PSR dilué peut donc être connue en tabulant exclusivement les réponses de PSR non dilué, ceci à la condition que le problème soit considéré dans l'espace des phases $(Y_{NO}, Z, \dot{\omega}_{NO})$. L'excellent accord entre les trajectoires de PSR dilués et non dilués est mis en évidence sur les figures 4.10(a) et 4.10(b). Ces figures montrent la valeur du terme source $\dot{\omega}_{NO}$ en fonction de Y_{NO} pour deux fractions de mélange.



(a)



(b)

FIGURE 4.7: Evolution de la composition des cinq PSR dans l'espace des phases (Y_{NH} , Z , $\dot{\omega}_{Y_{NH}}$). Trait rouge : trajectoire du PSR avec une fraction de mélange constante et égale à 0.045. Tirt noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.05$. Tirt point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.055$. Tirt point point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.06$. Points noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.065$. a) vue globale. b) zoom sur l'évolution du PSR non dilué.

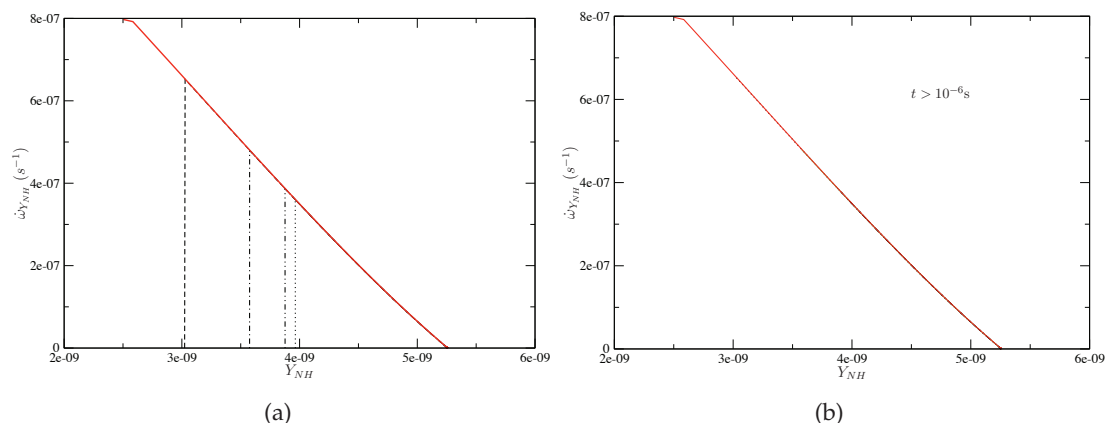


FIGURE 4.8: Représentations 2D des résultats de la figure 4.5. a) Coupe dans le plan défini par $Z = Z_{min}$. b) Coupe dans le plan défini par $Z = Z_{min}$ avec les trajectoires des compositions conditionnées par un temps $dt > 10^{-6}s$.

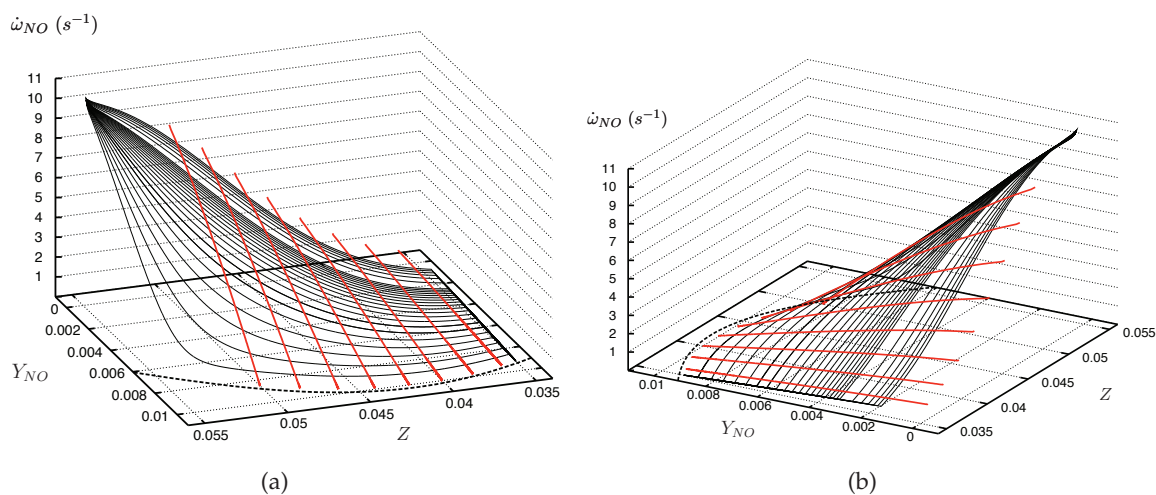


FIGURE 4.9: Evolution des compositions calculées avec le PSR représentée dans l'espace des phases (Y_{NO} , Z , $\dot{\omega}_{NO}$). Les PSR sont calculés avec la même fraction de mélange initiale et finale mais avec des de dilution différents. Le temps de dilution est incrémenté de 1 s à partir de 1 s jusqu'à 20 s et est incrémenté de 5 s entre 20 s et 50 s. Lignes noir : mélanges dilués. Lignes rouge : mélanges à fraction de mélange fixe. Tirets noir : conditions correspondant à l'équilibre thermodynamique.

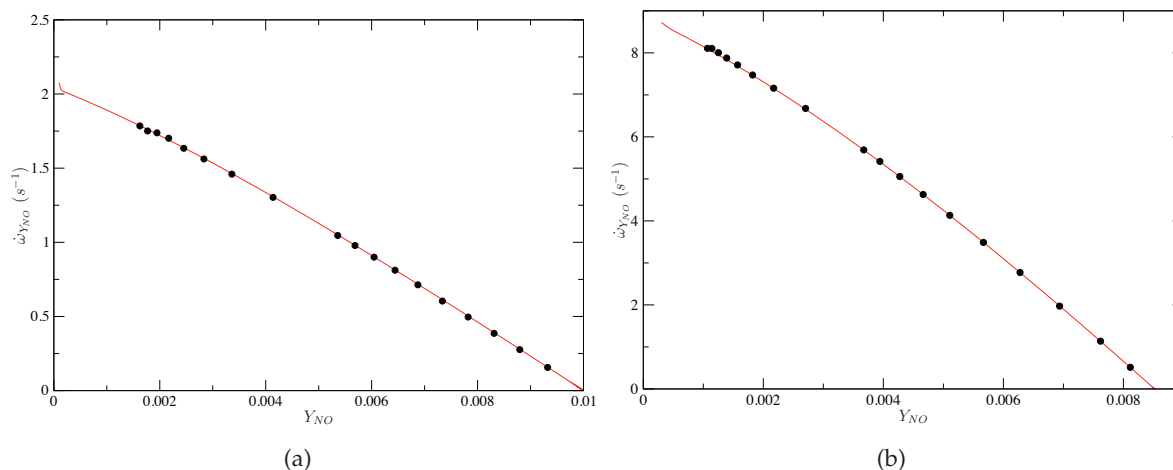


FIGURE 4.10: a) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.04$. b) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.05$. Points noirs : valeurs obtenues à partir de PSR dilués. Lignes rouges : trajectoire obtenue par un PSR à fraction de mélange constante.

La même étude a été menée avec l'espèce NH. Pour les raisons expliquées dans la sous-section précédente le domaine de richesse balayé est plus important : $Z_{init} = 0.065$ tandis que $Z_{final} = 0.035$. Les résultats sont illustrés sur la figure 4.11. Les résultats sont présentés sous différents angles pour être mieux appréhendés. Les différences importantes qui existent entre les trajectoires de PSR non-dilués et les trajectoires de PSR dilués sont mises en avant par la figure 4.12.

4.2.4 Conclusion intermédiaire

L'étude de la cinétique chimique des gaz brûlés dans un régime de dilution laisse entrevoir une propriété importante de la chimie azotée. Il semble que l'évolution du système pendant la phase de dilution corresponde à des trajectoires de PSR sans dilution. Cependant, cette propriété a été observée uniquement dans un sous espace particulier (Y_{NO} , Z , $\dot{\omega}_{NO}$). Toutefois cette étude souffre de lacunes. En effet, elle n'est pas exhaustive : les résultats obtenus sont nécessairement visualisés d'une façon adaptée au phénomène physique que l'on souhaite représenter. De plus les calculs effectués ne reflètent pas toutes les possibilités envisageables, notamment en terme de condition initiale et de temps de dilution. C'est dans ce souci d'exhaustivité et de rigueur qu'une étude du système chimique plus poussée a été menée.

En considérant que la dilution est une perturbation du système chimique, il est possible de faire une analogie entre les résultats présentés dans cette sous-section et les travaux de Nafe et Maas [96] publiés en 2002. Ces auteurs ont mis en évidence le fait que la chimie azotée ajoute un temps caractéristique au système chimique, ce qui suggère que la chimie des gaz brûlés est caractérisée par un attracteur 1D. Le but de l'étude présentée dans la section suivante est de caractériser avec exactitude l'attracteur qui pilote la cinétique chimique des gaz brûlés. Cette étude apporte de nombreuses précisions nécessaires à la tabulation de la chimie pour les émissions d'oxydes d'azote et permet également d'expliquer les comportements particuliers du NO et du NH observés dans cette sous-section.

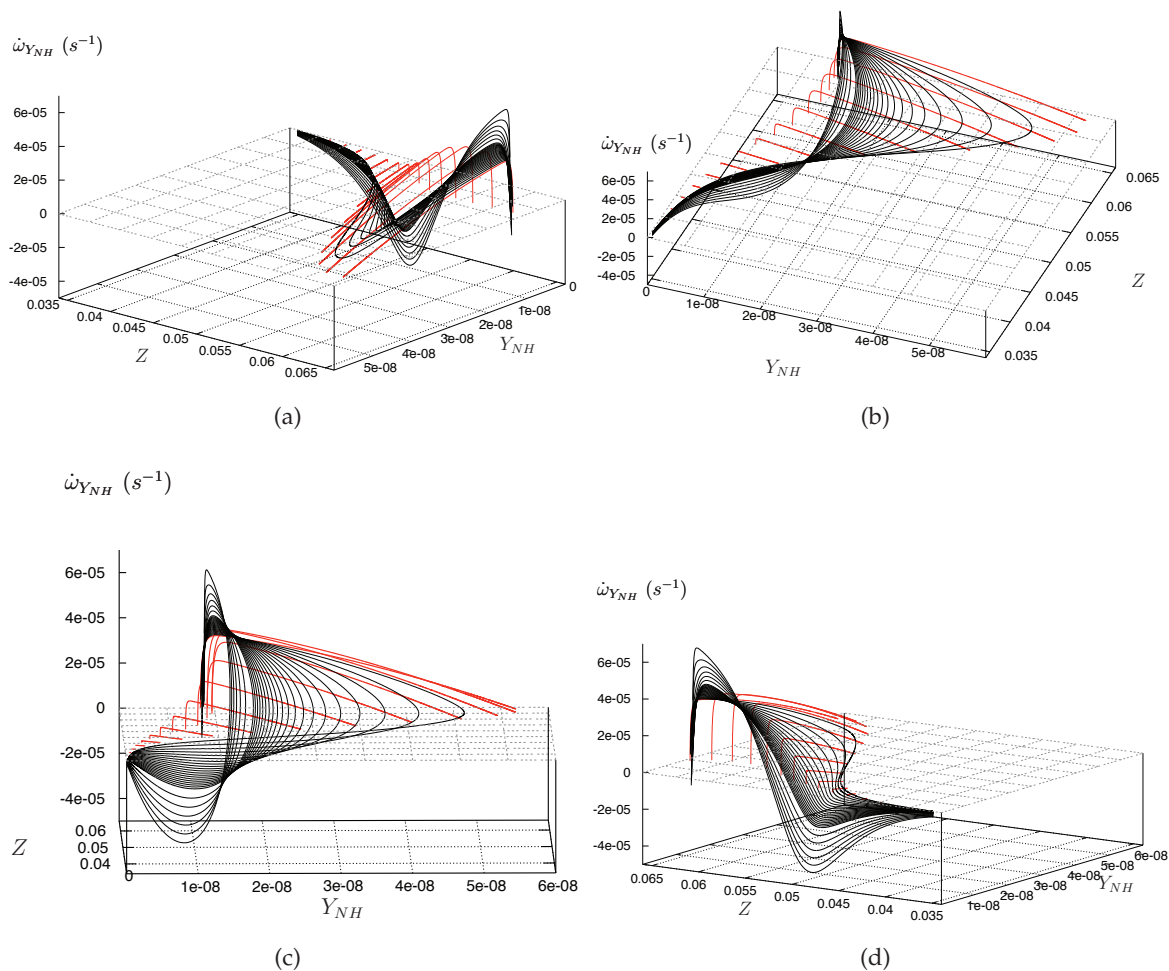


FIGURE 4.11: Evolution des compositions calculées avec le PSR représentée dans l'espace des phases (Y_{NH} , Z , $\dot{\omega}_{Y_{NH}}$). Les PSR sont calculés avec la même fraction de mélange initiale et finale mais avec des temps de dilution différents. Le temps de dilution est incrémenté de 1 s à partir de 1 s jusqu'à 20 s et est incrémenté de 5 s entre 20 s et 50 s. Lignes noires : mélanges dilués. Lignes rouges : mélanges à fraction de mélange fixe. Tirets noirs : conditions correspondant à l'équilibre thermodynamique.

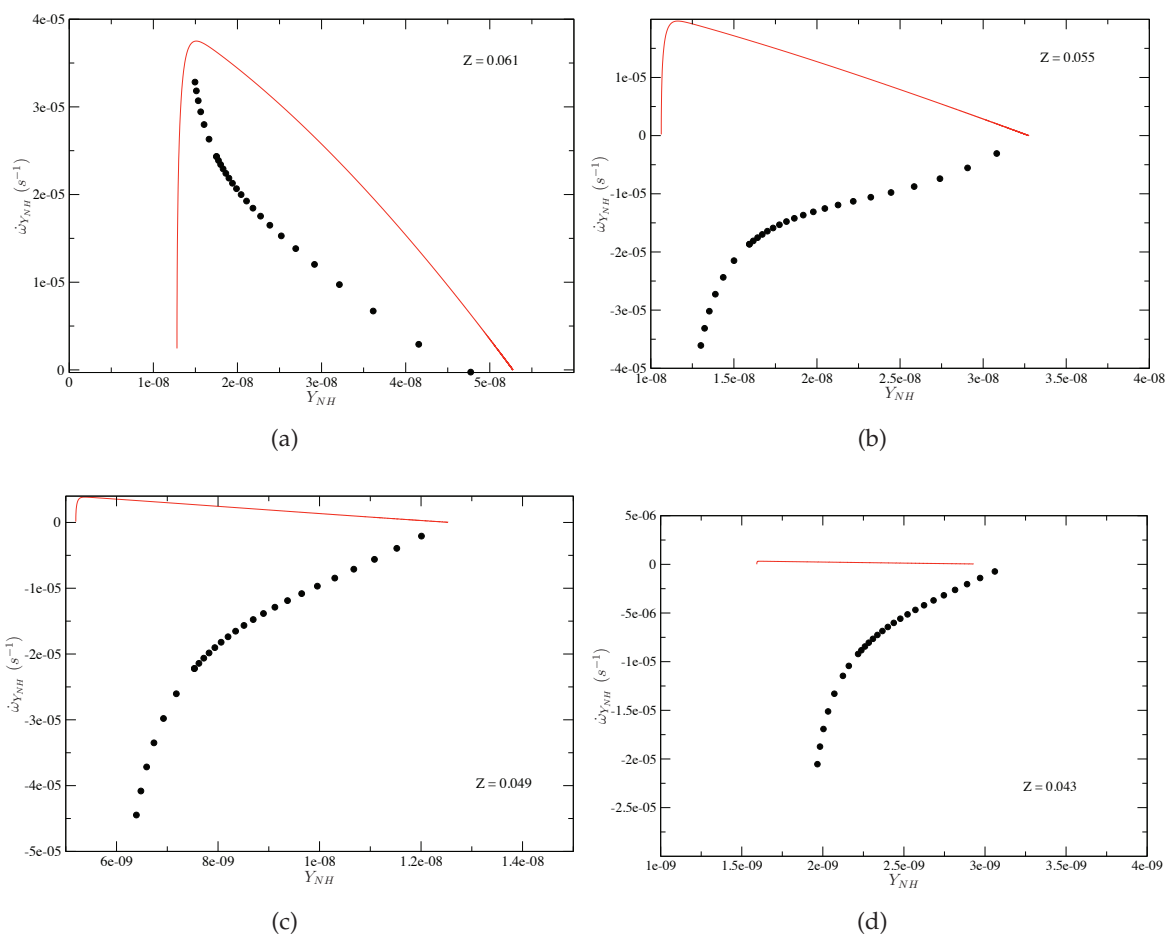


FIGURE 4.12: a) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.04$. b) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.05$. Points noirs : valeurs obtenues à partir de PSR dilués. Ligne rouge : trajectoire obtenue par un PSR à fraction de mélange constante.

4.3 Etude du système chimique dans le formalisme ILDM

4.3.1 Mise en évidence d'un attracteur dans les GB

La section 4.1.2 fait état d'une étude de la chimie azotée à travers le formalisme ILDM. Cette étude, publiée par Nafe et Maas [96] en 2002, se focalise sur la combustion du méthane et de l'air à pression atmosphérique. Les auteurs concluent que la chimie azotée ajoute un temps caractéristique à la cinétique chimique. Ils préconisent de considérer la cinétique du NO comme gelée durant la chimie carbonée, ceci afin de tabuler ces deux cinétiques de façon indépendante. Dans cette section nous proposons une étude comparable à celle menée par Nafe et Maas avec un degré de précision supplémentaire, de plus cette étude est étendue à la chimie du kérosène. Dans un premier temps cette section présente le calcul de la dimensionnalité de l'attracteur ainsi que le temps de convergence du système sur cet attracteur. Cette section se poursuit en définissant la variable de progrès optimale pour le suivi du NO dans les gaz brûlés. Afin de faire le lien entre les travaux de Nafe et Maas et l'étude du problème canonique, plaçons nous dans le contexte ILDM et considérons que la dilution est une perturbation du système. Le seuil qui discrimine les processus lents des processus rapides est alors le temps caractéristique de dilution τ_{dil} . Dans ce formalisme, tous les processus rapides évoluent de façon infiniment rapide comparativement à la dilution. Ils sont donc uniquement fonction de Z et des processus lents (voir le système 3.41). L'évolution des processus rapides est indépendante de l'intensité de dilution ou encore de la richesse initiale. C'est la raison pour laquelle si le problème est observé du point de vue d'un processus lent, l'évolution du système local d'un système dilué correspond à la réponse d'un système non dilué. Dès lors, seule la résolution des processus qui sont impactés par la dilution, tel le NO, nécessitent d'être résolus.

Les équations d'un système homogène, adiabatique et iso-bar ont été présentées dans le chapitre 3 (section 3.2.2.2). Cependant ces équations ne correspondent pas exactement au système d'équations résolu par Cantera. Cantera ne résout pas explicitement une équation pour la pression et l'enthalpie mais une équation pour l'énergie interne et le volume. Pour pouvoir interpréter les résultats de façon rigoureuse, nous n'étudions dans cette section que les valeurs propres associées à l'évolution du système dans l'espace des phases défini par les compositions. Le système se réduit donc aux équations :

$$\frac{\partial Y_i}{\partial t} = \dot{\omega}_i, (i = 1, \dots, N_s) . \quad (4.39)$$

Cette approche est valide puisqu'une perturbation dans la direction de l'enthalpie et de la pression ne peut en tout état de cause être relaxée. La négligence de ces deux paramètres permet donc de s'affranchir de deux valeurs propres positives qui n'apportent aucune information quant au pouvoir attractif d'un quelconque attracteur. Nous avons démontré dans le chapitre précédent que l'hypothèse de séparation des processus lents et rapides intrinsèques à un attracteur est faite par l'étude des valeurs propres de la matrice jacobienne du système chimique. Nous avons également vu qu'une valeur propre nulle correspond à chaque contrainte appliquée au système (conservation atomique, enthalpie et pression). Cependant, dans la pratique les composantes de la jacobienne du système 4.39 sont calculées selon la formule :

$$\mathbf{J}_{ij} = \left. \frac{\partial \dot{\omega}_i}{\partial Y_j} \right|_{\forall j \neq i, Y_j = cte} . \quad (4.40)$$

Cette formulation ne respecte pas la conservation atomique. Une conséquence directe est que les valeurs propres associées à chaque conservation atomique sont non nulles, mais positives. Le sens physique de ces valeurs propres positives est qu'une perturbation qui ne respecte pas le bilan atomique croît. Dans un souci d'exhaustivité nous pouvons ajouter que les espèces inertes, telle l'argon, ont en toute occasion un terme source nul et donc une valeur propre associée nulle.

Si les valeurs propres non négatives nous renseignent quant aux contraintes appliquées au système, elles ne donnent aucune information quant à l'évolution de ce dernier. Pour cette raison nous ne considérons ici que les valeurs propres à la partie réelle négative. Ces valeurs propres sont ordonnées dans l'ordre croissant de la partie réelle tel que : $\Re(\lambda_1) \geq \Re(\lambda_2) \geq \dots \geq \Re(\lambda_{N_S - N_a})$. Il existe de nombreuses façons de calculer la dimension de l'attracteur. La méthode choisie pour ces travaux se base sur la définition d'un temps caractéristique de coupure, notée τ_{tol} . Ce temps de coupure distingue les processus lents des processus rapides. La dimension de l'attracteur, notée n_{mani} est alors égale au nombre de processus dont le temps caractéristique est supérieur à τ_{tol} . Les processus chimiques ayant des temps caractéristiques inférieurs à τ_{tol} sont supposés à l'équilibre. Le calcul de la dimensionnalité de l'attracteur du système chimique a été effectué pour deux configurations :

1. Un réacteur homogène méthane/air à 10 bar dont les propriétés correspondent à celles référencées dans le tableau 4.2, assorties de $Z = 0.055$. Ce calcul a été entrepris avec le GRI-Mech dans sa version 3.0 [122]. Ce schéma contient 53 espèces, elles-mêmes composées de 5 atomes.
2. Un réacteur homogène kérosène/air à 10 bar dont les propriétés correspondent à celles référencées dans le tableau 4.3, assorties de $Z = 0.062$. Ce calcul a été effectué avec le schéma cinétique de Luche [81]. Ce schéma contient 91 espèces, elles-mêmes composées de 4 atomes. Notons que la température initiale est de 1100 K afin de permettre l'auto-inflammation du mélange.

	Fuel	Oxidizer
$Y_{C_{10}H_{20}}$	0.767	0.0
$Y_{C_9H_{12}}$	0.132	0.0
$Y_{C_9H_{11}}$	0.101	0.0
Y_{O_2}	0.0	0.233
Y_{N_2}	0.0	0.767
$T_0[K]$	1100.0	1100.0
$H[J/g]$	851.7	869.2

TABLE 4.3: Compositions du fuel et de l'oxydant pour les calculs kérosène/air, T_0 est la température initiale.

Dans un souci de lisibilité la dimension de l'attracteur n'est pas représentée en fonction du temps mais en fonction d'une variable de progrès construite pour évoluer dans les gaz brûlés jusqu'à l'équilibre thermodynamique de la chimie azotée. Cette variable de progrès notée c^+ obéit à la relation suivante :

$$c^+ = Y_c/Y_c^{eq} + Y_{NO}/Y_{NO}^{eq} . \quad (4.41)$$

Cette variable de progrès est égale à zéro dans les gaz frais et à deux à l'équilibre thermodynamique. Elle évolue monotonement dans le front de flamme et dans les gaz brûlés. La Figure 4.13 illustre l'évolution de la variable de progrès conventionnelle en fonction de la nouvelle variable de progrès pour le PSR méthane/air ainsi que le PSR kérosène/air.

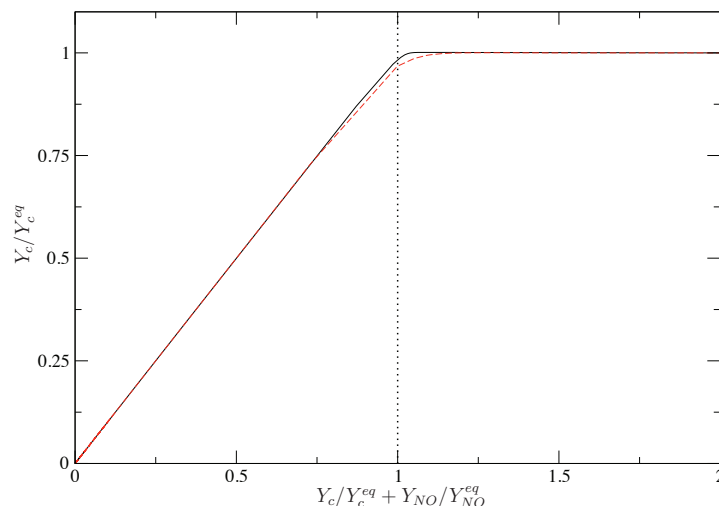


FIGURE 4.13: Evolution de la variable de progrès normalisée c en fonction c^+ pour deux PSR. Trait noir : conditions référencées dans le tableau 4.2 et $Z = 0.055$ à 10 bar. Tiret rouge : conditions référencées dans le tableau 4.3 et $Z = 0.062$ à 10 bar.

L'évolution de la dimension de l'attracteur est illustrée par la figure 4.14. Précisons que τ_{tol} est égal à 10^{-4} s pour ce qui concerne la chimie méthane/air tandis que la valeur de τ_{tol} choisie pour la chimie kérosène/air est 10^{-6} s.

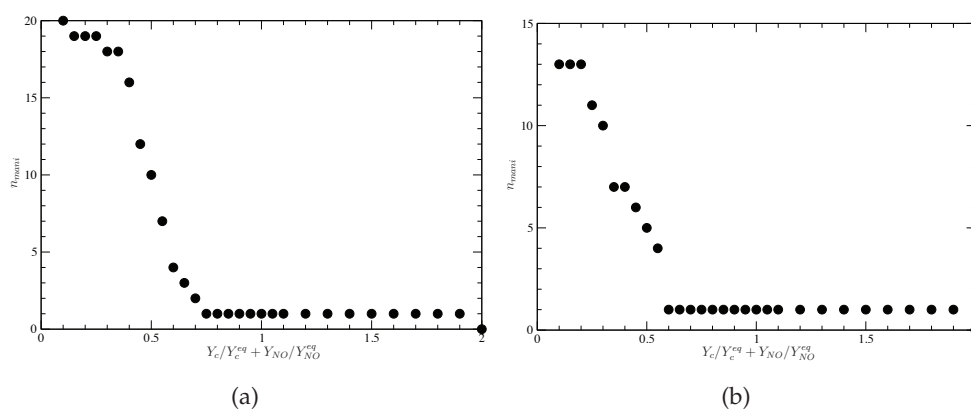


FIGURE 4.14: Evolution de n_{mani} en fonction c^+ pour deux PSR. a) Conditions référencées dans le tableau 4.2 et $Z = 0.055$ à 10 bar. b) Conditions référencées dans le tableau 4.3 et $Z = 0.062$ à 10 bar

Une première interprétation des résultats peut être faite en comparant la dimension qui caractérise la chimie du méthane et la chimie du kérosène. Bien que la cinétique du kérosène

comporte plus d'espèces, la variété a une dimension beaucoup faible. Ceci est attribué à la température qui est supérieure dans le cas de la combustion du kérosène, et ceci pour permettre l'auto-inflammation. La température à l'équilibre du PSR méthane/air est de 2520 K tandis que la température du PSR kérosène/air est de 2750 K. Cependant, le résultat le plus intéressant concerne l'attracteur. En effet, il est 1D lorsque la chimie carbonée approche l'équilibre, c'est-à-dire $c^+ \geq 0.8$. Ceci signifie que seul un processus est perturbé par les phénomènes agissant sur les temps supérieurs à τ_{tol} . Cette propriété de la chimie des gaz brûlés s'avère être d'une importance cruciale en vue de la tabulation de la chimie. En effet une unique variable de progrès est nécessaire et suffisante pour tabuler la chimie des gaz brûlés.

4.3.2 Détermination de la variable de progrès

Afin de choisir la variable de progrès la plus adéquate nous nous sommes prêtés à l'étude du vecteur propre associé à la première valeur propre. Ce vecteur propre est noté \vec{v}_1 . Celui-ci nous renseigne quant à la direction associée au processus chimique le plus lent. En définissant \vec{Y}_{NO} comme le vecteur unitaire de l'axe Y_{NO} , il est possible de calculer le produit scalaire : $\vec{Y}_{NO}/|\vec{Y}_{NO}| \cdot \vec{v}_1/|\vec{v}_1|$. Ce produit scalaire est toujours supérieur à 0.7 si $c^+ > 1$. Ceci signifie que l'attracteur 1D est principalement aligné dans la direction du NO dans l'espace des phases. Cette propriété justifie d'utiliser la fraction massique de NO pour suivre la formation des oxydes d'azote dans les gaz brûlés.

Cependant nous avons vu que les perturbations qui sont appliquées aux grandeurs qui conditionnent l'équilibre thermodynamique ne sont pas amorties. C'est la raison pour laquelle ces grandeurs doivent être incluses comme paramètre de tabulation. Dans la pratique, pour tabuler la chimie du NO dans les gaz brûlés selon le formalisme ILDM, il est nécessaire de tabuler le NO en utilisant sa propre fraction massique comme variable d'avancement. L'enthalpie, la pression et les bilans atomiques sont des paramètres qui doivent être pris en compte pour paramétrer la tabulation de l'attracteur. Cette thèse se place dans le contexte d'un problème à deux entrées, ce qui signifie que les bilans atomiques et l'enthalpie sont des fonctions linéaires de Z , de plus la pression thermodynamique est considérée comme constante. Dans ce contexte l'évaluation du NO se fait uniquement en résolvant une équation de transport pour Y_{NO} avec un terme source fonction de Y_{NO} lui-même et Z .

4.3.3 Relaxation de la composition sur l'attracteur

Les sections précédentes mettent en avant une propriété fondamentale de la chimie des gaz brûlés. Cependant, cette propriété est fondamentalement liée à un temps de coupure. Rappelons que l'évolution du système se fait dans $N_s - N_a$ directions, en classant les valeurs propres dans l'ordre croissant : $\Re(\lambda_1) \geq \Re(\lambda_2) \geq \dots \geq \Re(\lambda_{N_s - N_a})$; alors les temps caractéristiques de chaque processus chimique suit la loi : $\tau_1 \geq \tau_2 \geq \dots \geq \tau_{N_s - N_a}$. Rappelons également que dans cette thèse, le temps de perturbation introduit par la dilution est notée τ_{dil} . Pour que la cinétique chimique d'un mélange soumis à une perturbation corresponde effectivement à un attracteur 1D, il faut que tous les processus chimiques rapides convergent sur cet attracteur 1D plus vite que la perturbation du milieu. L'attracteur étant 1D le second processus le plus lent a un temps caractéristique égal à τ_2 . Afin de s'assurer de l'existence d'un attracteur 1D, et donc de justifier la tabulation selon une unique variable de progrès il faut que $\tau_2 < \tau_{dil}$. Dès lors il

est possible de calculer l'intensité de dilution maximale supportée par le système chimique afin qu'il garde le caractère monodimensionnel de l'évolution de la cinétique chimique. Ce temps de dilution minimal, noté τ_{dil}^{min} correspond au calcul de τ_2 . Ce temps a été calculé pour la chimie du méthane et du kérosène et ce pour une large gamme de conditions thermodynamiques. La température et la pression du système chimique ont été calculées de façon à correspondre à une pression isentropique :

$$P^{1-\gamma}T^\gamma = cte, \quad (4.42)$$

avec $\gamma = 1.4$. Les valeurs de τ_{dil}^{min} ont été calculées pour dix points de fonctionnement référencés dans le tableau 4.4. Le temps de dilution minimal est calculé pour des mélanges stœchiométriques

Pression (atm)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	10.0
Température (K)	294	358.4	402.4	436.9	465.6	490.5	512.6	532.6	550.8	567.6

TABLE 4.4: Conditions thermodynamiques utilisées pour calculer τ_{dil}^{min} .

et un avancement de $c^+ = 1.5$. Un protocole particulier a été imaginé afin de calculer la cinétique chimique d'un PSR dans les conditions qui correspondent à des températures et des pressions aussi basses que celles référencées dans le tableau 4.4. Ce protocole, schématisé par la figure 4.15, consiste en trois étapes :

1. La composition initiale du mélange est calculée selon les équations 4.32 tandis que l'enthalpie du mélange est très largement surestimée, ceci afin de permettre l'auto-inflammation du mélange. La composition du mélange s'auto-inflamme et évolue jusqu'à un avancement de $c = 0.3$.
2. Ensuite le mélange du PSR est soumis à une perte enthalpique afin que celle-ci soit égale à l'enthalpie correspondant à la composition et la température des gaz frais souhaitées. Durant la perte enthalpique la cinétique chimique est gelée.
3. Finalement, le calcul de la cinétique chimique est opéré à enthalpie constante.

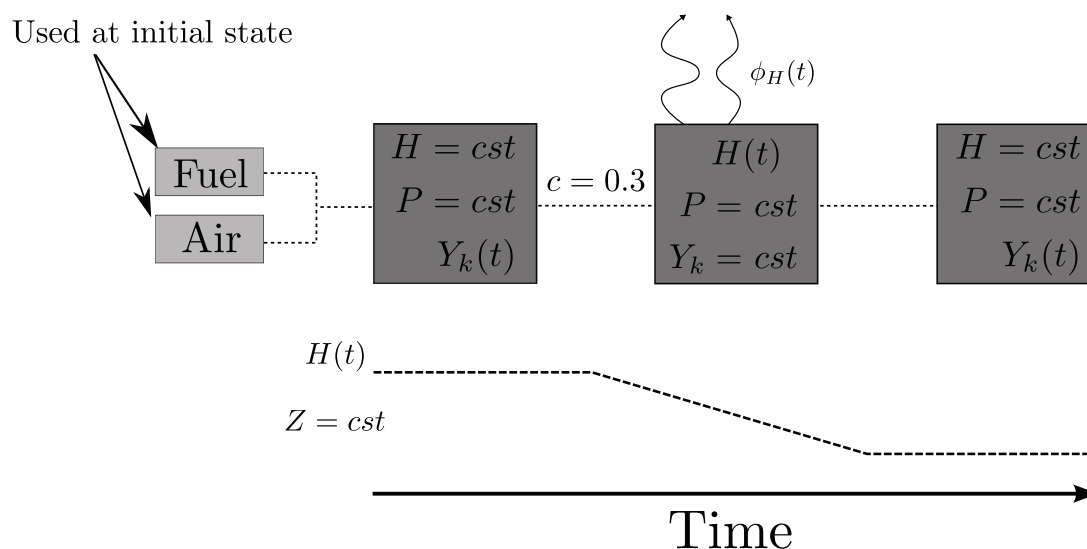


FIGURE 4.15: Représentation schématique du problème canonique.

Cette approche a été validée par le calcul d'une flamme 1D à 294 K et 1 atm et le calcul d'un PSR dans les mêmes conditions. En calculant un temps de résidence le long de la flamme 1D il est possible de comparer les deux évolutions du NO ainsi obtenues. Les résultats validant l'approche adoptée sont présentés sur la figure 4.16. Les évolutions des temps de di-

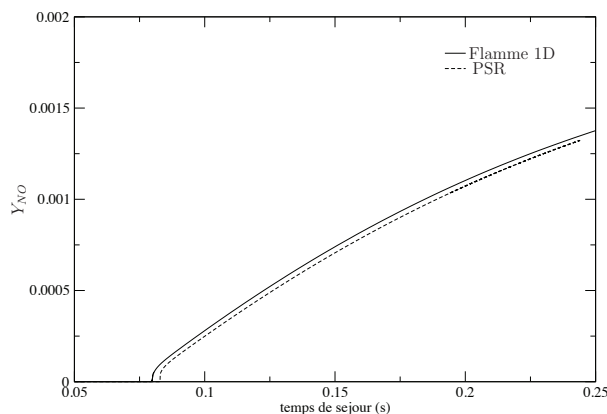


FIGURE 4.16: Evolutions du NO obtenues par le calcul d'une flamme 1D et d'un PSR avec perte enthalpique pour : $P = 1$ atm et $T = 294$ K.

lution minimaux supportés par le système chimique sont représentées sur la figure 4.17. En ce qui concerne la combustion méthane/air, le temps de dilution minimal augmente avec la pression et la température. La tendance n'est pas la même pour ce qui est de la combustion kérosène/air. Le temps de dilution minimal toléré par l'attracteur 1D diminue lorsque la pression est supérieure à 4 atm.

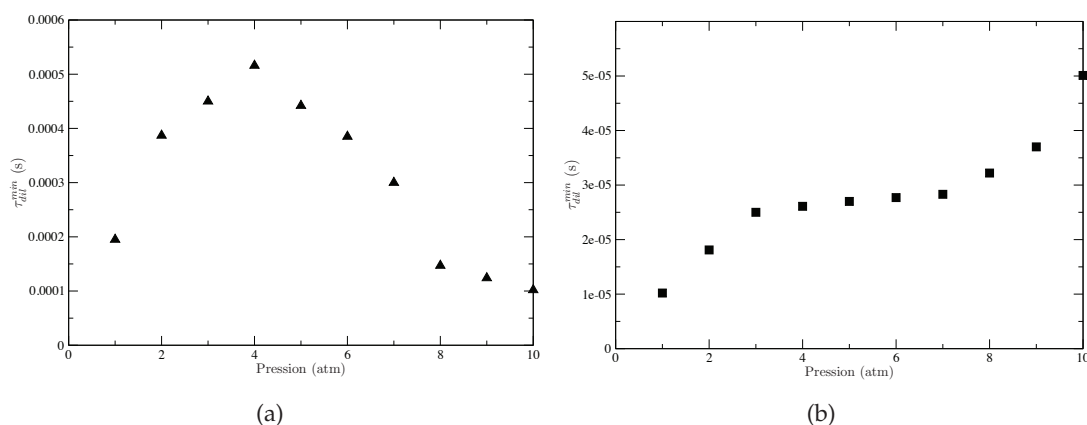


FIGURE 4.17: Evolution de τ_{dil}^{min} en fonction de la pression. a) Chimie méthane/air. b) Chimie kérosène air.

4.3.4 Le post-traitement des espèces dans les gaz brûlés en régime de dilution

Nous avons vu dans la sous-section 4.3.2 que le monoxyde d'azote est particulièrement adapté à la description de l'attracteur 1D qui pilote la cinétique des gaz brûlés. Le choix de

cette variable de progrès présente également l'avantage de déduire directement la quantité de NO produite. L'évolution des autres espèces est en revanche beaucoup plus délicate à prédire. En effet les calculs présentés dans la section 4.2.3 suggèrent que le transport d'une fraction massique de NH avec un terme source extrait d'une table chimique donne de mauvais résultats dans les gaz brûlés. La raison est que les processus rapides voient la dilution et doivent s'y adapter tout en relaxant sur l'attracteur 1D. L'adaptation du système chimique à la dilution est une information qui n'est pas contenue dans la table chimique. Cette propriété ne peut donc pas être prise en compte durant le calcul CFD. Seuls les espèces qui évoluent avec le processus lent peuvent donc être estimés avec une équation de transport et un terme source extrait de la table chimique. L'étude du système chimique sous le formalisme ILDM permet d'identifier ces espèces. Elles sont au nombre de trois : le NO, le N₂ et l'O₂. Pour ce qui est du spot traitement des autres espèces, un autre procédé doit être employé.

Selon le système 3.41, si on se place dans le contexte des gaz brûlés, la composition des espèces qui suivent les processus rapides sont uniquement fonction de Z et Y_{NO} . Notons tout de même que cette propriété n'est valable que sous l'hypothèse où le système est observé sur des temps caractéristiques de l'ordre de l'attracteur 1D ($\tau > \tau_{dil}^{min}$). En effet, il est nécessaire de laisser le temps aux processus rapides de converger sur l'attracteur 1D. Dès lors la connaissance de la fraction massique d'une espèce quelconque, Y_i , doit être extraite de la table chimique en fonction de Z et Y_{NO} et non estimée à partir d'une équation de transport. La convergence des processus rapides sur l'attracteur 1D constitue l'hypothèse sous-jacente à ce procédé. En conclusion à cette étude, les espèces évoluant selon les processus rapides doivent être estimées localement à partir de la variable de progrès adéquate et de la fraction de mélange. Cette étude condamne donc l'emploi d'une variable de progrès qui contiendrait des espèces à l'évolution rapide, tel le NO₂.

Dans un souci de praticité nous avons choisi d'estimer le NO₂ en résolvant une équation de transport dont le terme source est extrait de la table chimique. Cependant cette espèce minoritaire n'évolue pas selon l'attracteur 1D qui caractérise la chimie azotée. Une étude complémentaire menée en fin de thèse et présentée ici conclut sur la non pertinence du post-traitement du NO₂ tel qu'il a été effectué dans les travaux présentés précédemment. Ces travaux s'appuient sur le problème canonique présenté dans la section 4.2.1 et ils ont pour objectif d'évaluer si la méthode de post-traitement choisie est adaptée au NO₂. Les calculs effectués consistent dans le calcul d'un mélange stœchiométrique méthane/air à une pression de 10 bar dilué à une richesse plus faible et avec différentes intensités de dilution. Les résultats de ces PSR sont représentés sur la figure 4.18. Ils sont représentés dans l'espace des phases qui correspond à celui de la tabulation de la chimie azotée, c'est à dire (Z, Y_{NO}, ω_{NO_2}). Ces travaux mettent en avant une particularité de la cinétique responsable de la production du NO₂ vis-à-vis de la production de NO. Le NO₂ n'étant pas une espèce qui évolue avec l'attracteur 1D son évolution est très sensible à la dilution, et ce même pour un faible taux de dilution. Ces informations sont en accord avec les calculs effectués précédemment. En effet, puisque le NO₂ est une espèce rapide, il s'avère très peu judicieux d'évaluer le taux de NO₂ en résolvant une équation de transport dont le terme source est extrait d'une table chimique construite à partir de mélange non-dilué. Une formulation plus adaptée consiste à extraire la fraction massique de NO₂ directement de la table en fonction de Z et Y_{NO} , sous l'hypothèse que la fraction massique de NO₂ converge sur l'attracteur rapidement. Michel *et al.* [91] ont été les premiers à démontrer la différence in-

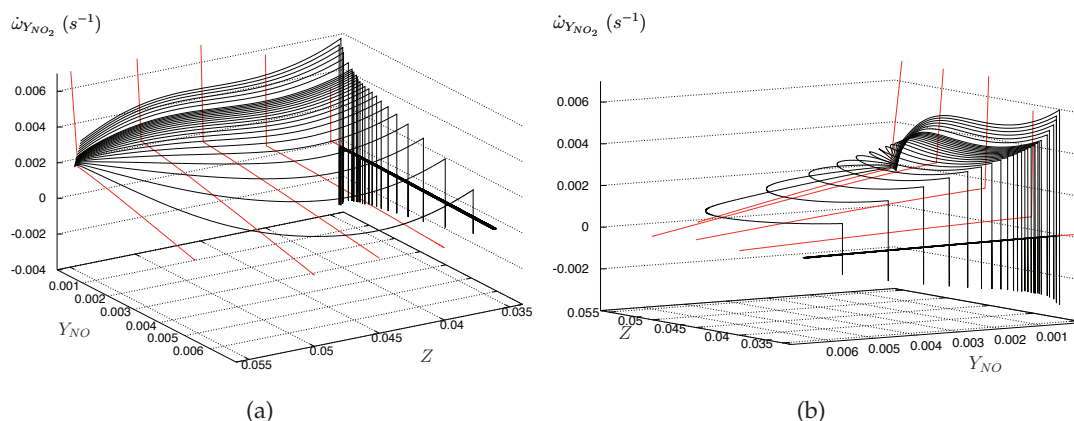


FIGURE 4.18: Evolution des compositions calculées avec le PSR représentée dans l'espace des phases (Y_{NO} , Z , $\dot{\omega}_{NO_2}$). Les PSR sont calculés avec la même fraction de mélange initiale et finale mais avec des taux de dilution différents. Le taux de dilution est incrémenté de $1 s^{-1}$ à partir de $1 s^{-1}$ jusqu'à $20 s^{-1}$ et est incrémenté de $5 s^{-1}$ entre $20 s^{-1}$ et $50 s^{-1}$. Lignes noirs : mélanges dilués. Lignes rouges : mélanges à fraction de mélange fixe.

roduite par ces deux procédés de post-traitement. Cette étude analytique est appuyée par des calculs comparatifs concernant le CO et le CO_2 . Les auteurs montrent analytiquement que ces différences sont dues aux taux de dissipation scalaire de la fraction de mélange, de la variable de progrès ainsi que le taux de dissipation scalaire croisé de ces deux paramètres. Les résultats présentés sur la figure 4.18 suggèrent que le post-traitement du NO_2 tel qu'il a été effectué pour les calculs présentés dans ce chapitre, sous-prédit grandement le taux de NO_2 calculé. Le procédé qui consiste à extraire la fraction massique de NO_2 directement de la table chimique n'a pu être testé sur les calculs de la configuration Ardiden durant cette thèse.

4.4 Conclusion sur l'étude de la chimie azotée

L'étude du problème canonique permet de mettre en avant plusieurs spécificités de la chimie azotée dans un régime de dilution. Cette étude met en avant le fait qu'il existe un sous-espace dans lequel le système chimique soumis à une dilution a les mêmes trajectoires qu'un système chimique dans les mêmes conditions thermodynamiques mais sans dilution. L'espace en question est $(Y_{NO}, Z, \dot{\omega}_{NO})$, ce qui suggère que la fraction massique de NO remplit les conditions nécessaires pour être utilisée comme variable de progrès dans les gaz brûlés. L'étude du système chimique soumis à dilution dans un autre espace nous renseigne quant à la non pertinence d'inclure certaines espèces comme le NH. Ces informations sont cependant insuffisantes pour l'établissement d'un modèle de prédiction de polluant par la tabulation de la chimie. Cette méthode n'est pas exhaustive, les calculs sont coûteux en temps CPU et difficiles à post-traiter. Afin de s'assurer du choix le plus judicieux en terme de variable de progrès (nombre de variable de progrès nécessaire et composition de ces variables de progrès), une étude complémentaire basée sur l'étude du système chimique sous le formalisme ILDM a été menée. Une telle étude ne prend pas en compte les effets de dilution. En effet, elle ne nous

apprend pas comment la perturbation de Z est amortie mais comment le système évolue suite à une perturbation induite par la dilution. C'est dans ce sens que l'étude du système chimique sous le formalisme ILDM est pertinent. L'association de l'étude menée avec le problème canonique et de l'étude des valeurs/vecteurs propres du système ont conduit aux conclusions suivantes :

- Du fait de l'existence d'un attracteur 1D dans les gaz brûlés, la cinétique chimique des gaz brûlés peut être décrite avec une unique variable de progrès. Cette variable de progrès est idéalement la fraction massique de monoxyde d'azote. En revanche cette variable de progrès ne doit pas contenir les espèces à l'évolution rapide tel le NH.
- Il est possible de définir le temps de dilution minimal supporté par cette attracteur. Au delà de ce temps de dilution il est nécessaire de multiplier les variables de progrès pour prendre en compte les effets introduits par la dilution.
- Les espèces qui évoluent avec les processus chimiques rapides ne peuvent être connues par la tabulation des termes sources chimiques de régimes sans dilution. Il est probable que la tabulation des fractions massiques en fonction des processus lents soit plus pertinente. Des travaux doivent être menés pour approfondir cet aspect de la cinétique chimique.
- Les propriétés mises en évidence pour une cinétique méthane/air avec le GRI-mech 3.0 [122] ont été retrouvées avec le GRI-mech 2.11 [45] (résultats non présents dans le manuscrit). Les mêmes propriétés ont été mises en évidence pour la chimie kérosène/air.

Cette étude peut être complétée par les travaux de Schmidt *et al.* [114], qui spécifient qu'un attracteur calculé pour une gamme de compositions en éléments, d'enthalpie et de pression peuvent être utilisés arbitrairement lors de calculs de flammes laminaires ou turbulentes si ces régimes sont dans les mêmes conditions thermodynamiques. Il est donc possible d'extrapoler les résultats obtenus à partir des PSR aux régimes des flammes de pré-mélange laminaires et ainsi de tabuler une collection d'attracteur 1D à partir de flammes 1D pré-mélangés pour une collection de fractions de mélange.

4.5 Le modèle NOMANI : Nitrogen Oxide emission model with one-dimensional MANifold

Le modèle NOMANI, comme beaucoup de modèles de prédiction de monoxyde d'azote antérieurs, est basé sur une équation de transport de la fraction massique de NO qui suit la relation :

$$\frac{\partial \rho Y_{NO}}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_i Y_{NO}}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\mu}{Sc} \frac{\partial Y_{NO}}{\partial x_i} \right) + \rho \dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}. \quad (4.43)$$

Le caractère innovant de ce modèle consiste dans la fermeture du terme source, $\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}$, qui est fermé de façon à calculer de manière précise le taux de NO produit dans le front de flamme et le taux de NO produit dans les gaz brûlés, tout en considérant les effets dus à la dilution. Dans cette section nous distinguerons le terme source du NO utilisé dans l'expression du modèle ($\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}$) et le terme source du NO dans le contexte d'une cinétique chimique complexe ($\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}$). Le choix a été fait de rendre compte de la production de NO avec deux variables de progrès, une première pour la chimie carbonée et une seconde pour le suivi du NO dans les gaz

brûlés. Cette méthode présente deux avantages par comparaison aux modèles antérieurs à ces travaux. D'un côté, extraire le terme source de NO en fonction de la variable de progrès Y_c dans le front de flamme assure un couplage entre la position et la dynamique du front de flamme et la production de NO. D'un autre côté, tabuler le suivi du NO en fonction de Y_{NO} dans les gaz brûlés permet de prendre en compte les effets de dilution sur la cinétique chimique, comme expliqué dans la section précédente.

Cependant le suivi du NO avec une unique variable de progrès dans le front de flamme représente une hypothèse forte (hypothèse sous-jacente à la méthode FPI). En effet, la cinétique chimique qui est le siège du front de flamme n'est pas régie par un attracteur 1D, mais est composée d'un grand nombre de dimensions. La résolution du front de flamme avec un grand nombre de variables de progrès étant trop coûteuse, la réponse de flamme est projetée sur une unique variable de progrès. Cette approximation représente l'hypothèse la plus forte du modèle. Par ailleurs le suivi du NO produit dans le front de flamme avec Y_c peut être assuré selon deux procédés. Le premier consiste à extraire un terme source de la table FPI et le deuxième procédé consiste lui à extraire la fraction massique de NO de la table FPI, toujours en fonction de Y_c et Z . Biagioli et Guthle [11] montrent dans leurs travaux que le taux de prompt NO est fortement dépendant de l'histoire du mélange. Dès lors que le système varie en richesse durant l'évolution de la chimie carbonée, il est préférable d'extraire le terme source de NO de la table plutôt que d'extraire la fraction massique directement. Cette analyse est en accord avec les travaux de Nafe et Maas [96] qui calculent différents PSR dans les mêmes conditions thermodynamiques mais avec une quantité initiale de NO différente. Les résultats illustrés sur la figure 4.19 indiquent que la quantité de NO produite dans le front de flamme ne dépend pas du taux de NO initial. Ces résultats préconisent d'extraire le terme source de NO de la table FPI. Ces informations en main, le terme source $\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}$ est extrait d'une table chimique dédiée à la

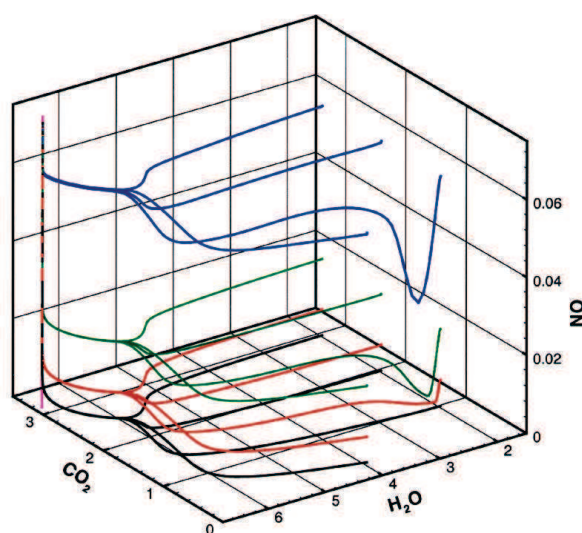


FIGURE 4.19: Compositions chimiques de différents réacteurs homogènes d'un mélange stœchiométrique méthane/air avec des quantités initiales de NO différentes. Les compositions sont projetées dans l'espace (CO₂/H₂O/NO). Les concentrations sont exprimées en mol.kg⁻¹. Illustration extraite des travaux de Nafe et Maas [96].

cinétique du front de flamme ($\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{FF}(C, Z)$) tandis qu'il est extrait d'une table dédiée à la chimie

azotée dans les gaz brûlés ($\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}(Y_{NO}, Z)$). Le paramètre utilisé pour basculer de la table carbonée à la table azotée est la variable de progrès normalisée c . Le terme source obéit à l'écriture suivante :

$$\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani} = \underbrace{\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{FF}(c, Z)\mathcal{H}(1 - \epsilon - c)}_{\text{Prompt NO}} + \underbrace{\dot{\omega}_{Y_{NO}}^{GB}(Y_{NO}, Z)\mathcal{H}(c - (1 - \epsilon))}_{\text{NO produit dans le front de flamme}}, \quad (4.44)$$

où \mathcal{H} est la fonction d'Heaviside. Ce modèle ne fait aucune hypothèse sur la cinétique chimique elle-même. Tous les mécanismes réactionnels considérés dans le calcul *a priori* de la table chimique sont considérés durant le calcul CFD. Le paramètre ϵ est utilisé pour discriminer le front de flamme des gaz brûlés. Le choix d' ϵ a été fait de façon à utiliser Y_{NO} comme variable de progrès dans les gaz brûlés et de manière à assurer une évolution du NO la moins raide possible dans le front de flamme. La figure 4.20 illustre la variation de Y_{NO} en fonction de Y_c ainsi que la variation du terme source de NO en fonction de Y_{NO} pour $c = (1 - \epsilon)$. Au vu de ces résultats, ϵ a été choisi égal à 0.01, de cette façon dY_{NO}/dY_c est faible tout en assurant une valeur d' ϵ suffisamment faible pour que le NO produit dans le front de flamme soit décrit avec Y_c .

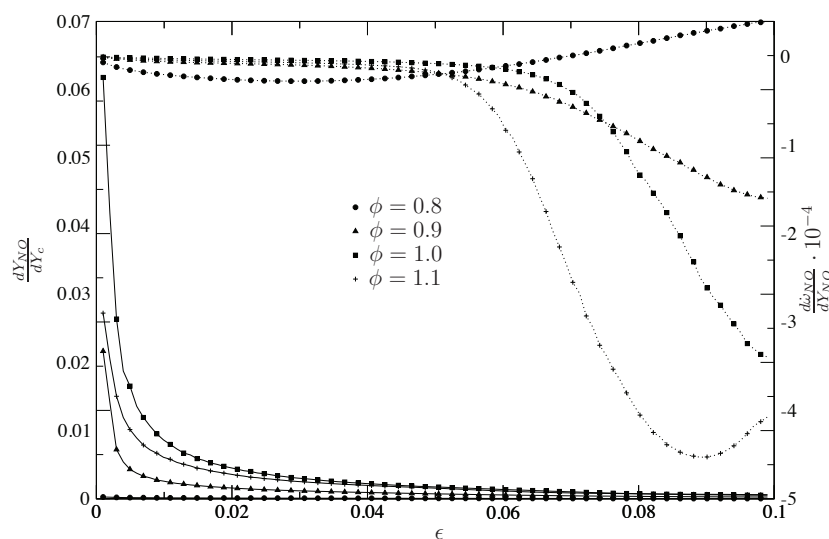


FIGURE 4.20: Evolution des termes sources chimiques à différentes richesses d'une flamme 1D. Différents symboles sont utilisés pour représenter la variation en richesse ϕ . Lignes : dY_{NO}/dY_c . Points : $d\dot{\omega}_{NO}/dY_{NO}$.

4.5.1 Validation sur des flammes 1D

Les premières validations du modèle ont consisté dans le calcul d'une flamme de pré-mélange 1D. La comparaison entre les résultats obtenus avec le modèle NOMANI et des calculs de chimie complexe sont représentés sur la figure 4.21. L'évolution du NO montre un excellent accord entre ces différents calculs. La zone d'intérêt de ces calculs comparatifs est centrée sur la

région proche front de flamme, ceci afin de montrer la capacité du modèle à prédire le prompt NO et le NO formé dans les gaz brûlés.

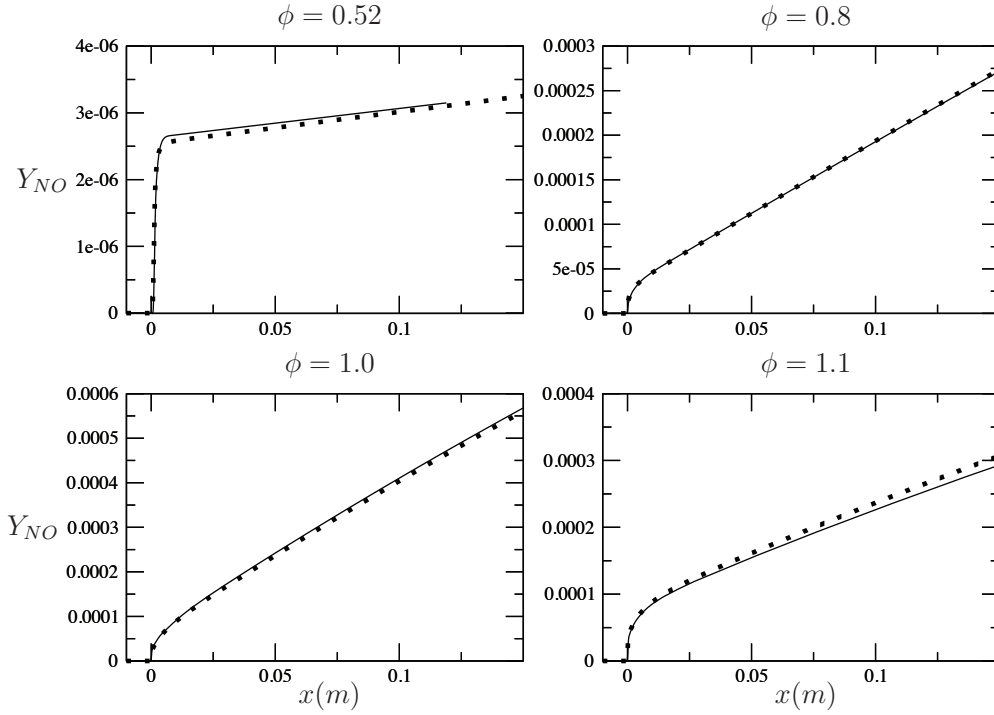


FIGURE 4.21: Evolution spatiale de $Y_{NO}(Z, Y_c)$ pour une flamme 1D à différentes richesses. Symboles : chimie détaillée. Lignes : solver CFD associé au modèle NOMANI.

4.5.2 Ecriture du modèle dans un contexte LES

Cette section est consacrée à la fermeture de l'équation 4.44 dans le formalisme LES, et tout particulièrement à la fermeture du terme source : $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}$. L'expression proposée dans le cadre de ces travaux est la suivante :

$$\begin{aligned}
 \overline{\rho \dot{\omega}_{Y_{NO}}^{nomani}} &= \overline{\rho \dot{\omega}_{Y_{NO}}^{FF}(c, Z) \mathcal{H}(1 - \epsilon - c)} \\
 &+ \overline{\rho \dot{\omega}_{Y_{NO}}^{GB}(Y_{NO}, Z) \mathcal{H}(c - (1 - \epsilon))} \\
 &\simeq \bar{\rho} \tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{FF}(\tilde{c}, c_v, \tilde{Z}, Z_v) \mathcal{H}(1 - \epsilon - \tilde{c}) \\
 &+ \bar{\rho} \tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{GB}(\tilde{Y}_{NO}, \tilde{Z}) \mathcal{H}(\tilde{c} - (1 - \epsilon)),
 \end{aligned} \tag{4.45}$$

L'hypothèse principale de cette fermeture est que l'Heaviside filtrée d'un paramètre est égale à l'Heaviside du paramètre filtré. L'étude présentée dans cette section valide cette hypothèse et discute de la fermeture du terme $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{GB}$. Il est toutefois nécessaire de préciser que le terme source $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{FF}$ est extrait d'une table PCM-FPI, pour laquelle la PDF est supposée être une β -fonction. Des travaux récents [95] ont mis en avant la pertinence de ce formalisme pour le terme source $\tilde{\omega}_{Y_c}$. La figure 4.22 illustre la ressemblance entre les deux profils de ces termes sources et justifie l'utilisation du formalisme PCM-FPI.

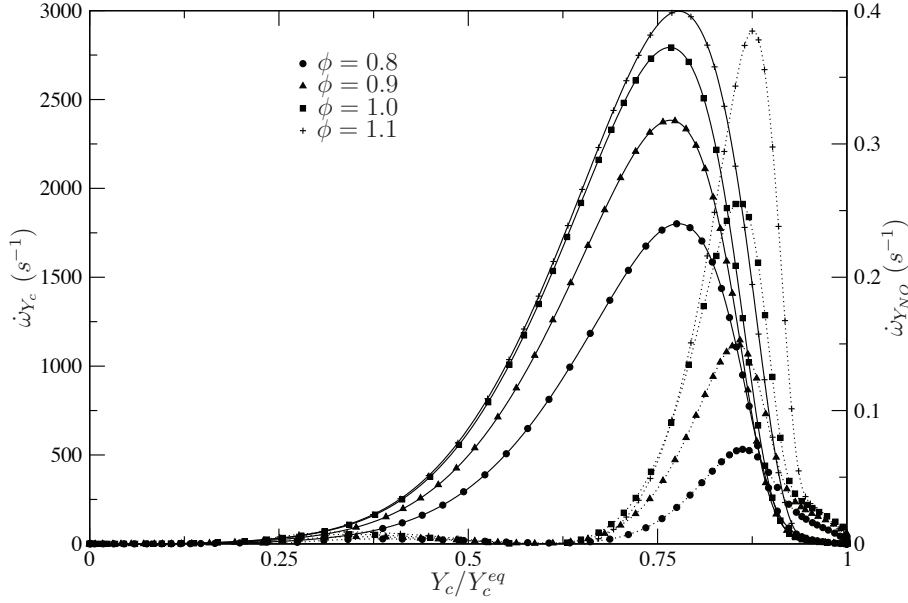


FIGURE 4.22: Evolution du terme source chimique pour une flamme 1D pour différentes richesses. Les symboles spécifient la richesse : ϕ . Lignes : $\dot{\omega}_{Y_c}$. Points : $\dot{\omega}_{Y_{NO}}$

L'étude présentée dans cette section consiste dans la résolution de flammes 1D laminaires, filtrées avec un filtre Gaussien. L'expression du filtre Gaussien est la suivante :

$$\tilde{\phi}(x) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \rho(x)\phi(x)\mathcal{G}_{\Delta}(x' - x)dx'}{\int_{-\infty}^{+\infty} \rho(x)\mathcal{G}_{\Delta}(x' - x)dx'}, \quad (4.46)$$

avec

$$\mathcal{G}(x, \Delta) = \frac{6}{\sqrt{\pi}} \exp(-6x^2/\Delta^2). \quad (4.47)$$

A partir des réponses de flammes 1D laminaires filtrées à différentes tailles de filtre, il est possible de calculer avec exactitude l'ensemble des grandeurs filtrées. Il est donc réalisable de comparer les fermetures LES avec les termes filtrés exacts, et ainsi d'estimer la précision du modèle. La flamme considérée ici est une flamme méthane/air à pression atmosphérique. De façon à évaluer l'importance de la taille de filtre, il s'avère utile de calculer l'épaisseur de flamme caractéristique. Cette épaisseur est considérée à partir du gradient de la variable de progrès. Elle obéit à la relation :

$$\delta_{Y_c}(Z) = \frac{Y_c^{eq}}{|\nabla Y_c|_{max}} \quad (4.48)$$

Pour la flamme considérée dans cette section, l'épaisseur de flamme est égale à 386 μm .

4.5.2.1 Traitement de la fonction d'Heaviside

Dans le but d'évaluer l'impact du traitement sur la fonction d'Heaviside, deux fonctions ont été définies : ξ_1 et ξ_2 .

$$\xi_1(\Delta, \epsilon) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\rho} \tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{FF}(\tilde{c}) \mathcal{H}(1 - \epsilon - \tilde{c}) dx}{\int_{-\infty}^{+\infty} \rho \omega_{Y_{NO}}^{FF}(c) \mathcal{H}(1 - \epsilon - c) dx} \quad (4.49)$$

$$\xi_2(\Delta, \epsilon) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\rho} \tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}(\tilde{c}) \mathcal{H}(\tilde{c} - (1 - \epsilon)) dx}{\int_{-\infty}^{+\infty} \rho \omega_{Y_{NO}}^{BG}(c) \mathcal{H}(c - (1 - \epsilon)) dx} \quad (4.50)$$

La fonction $\xi_1(\Delta, \epsilon)$ est le rapport de la masse de NO évaluée par le modèle dans le front de flamme sur la masse exacte de NO qui est produit dans le front de flamme filtré. Les résultats sont représentés sur la figure 4.23(a). Le paramètre de plus grande importance est ϵ . Cependant si ϵ est de l'ordre du pourcentage, l'erreur relative est négligeable, quelle que soit l'épaisseur de filtre. La fonction $\xi_2(\Delta, \epsilon)$ est le rapport de la masse de NO évaluée par le modèle dans les gaz brûlés sur la masse exacte de NO produit dans les gaz brûlés de la flamme filtrée. Les résultats sont représentés sur la figure 4.23(b). L'erreur relative est négligeable quels que soient Δ et ϵ . Ces résultats justifient l'approximation qui est faite quant au traitement de la fonction d'Heaviside.

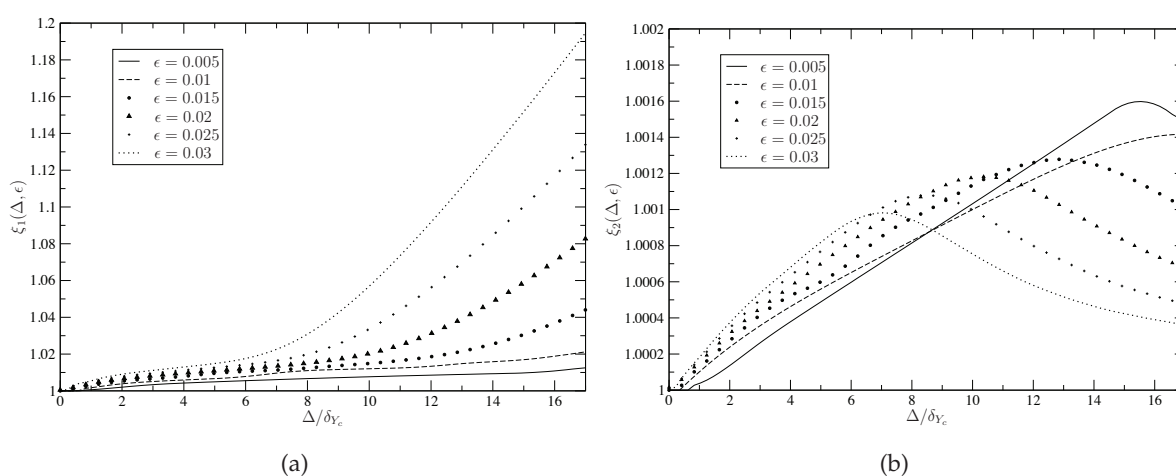


FIGURE 4.23: Représentations des deux fonctions : a) $\xi_1(\Delta, \epsilon)$ et b) $\xi_2(\Delta, \epsilon)$.

4.5.2.2 Expression du terme $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}$

Dans le but de proposer une écriture pour le terme $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}$, une flamme 1D stœchiométrique a été filtrée selon les équations 4.46 et 4.47. La réponse de flamme est filtrée avec 20 tailles de filtre par pas de $80 \mu\text{m}$. De cette façon, la taille de filtre maximale est égale à quatre fois l'épaisseur de flamme. A partir de la réponse de flamme filtrée, il est possible de calculer les deux grandeurs exactes : \tilde{c} et S_c . La réponse de flamme filtrée à différentes tailles de filtre, ainsi que les champs de \tilde{c} et S_c sont représentés sur la figure 4.24. Pour étudier l'effet du filtrage sur l'évaluation du terme source dans les gaz brûlés, les réponses de flamme sont représentées dans l'espace (figures 4.25(a) et 4.25(b)). Les réponses de flammes sont aussi représentées dans l'espace des phases Y_{NO} (figures 4.25(c) et 4.25(d)), cet espace des phases correspond à celui de la table chimique dédiée à la chimie azotée. Afin de clarifier les résultats, la fraction massique de NO est normalisée : $Y_{NO}^+ = Y_{NO}/Y_{NO}(c = 0.99)$. Les résultats illustrent le fait que les réponses de flamme filtrées sont égales aux réponses de flamme non-filtrées dans les gaz brûlés. Ceci est dû à l'absence de raideur de la cinétique chimique dans les gaz brûlés.

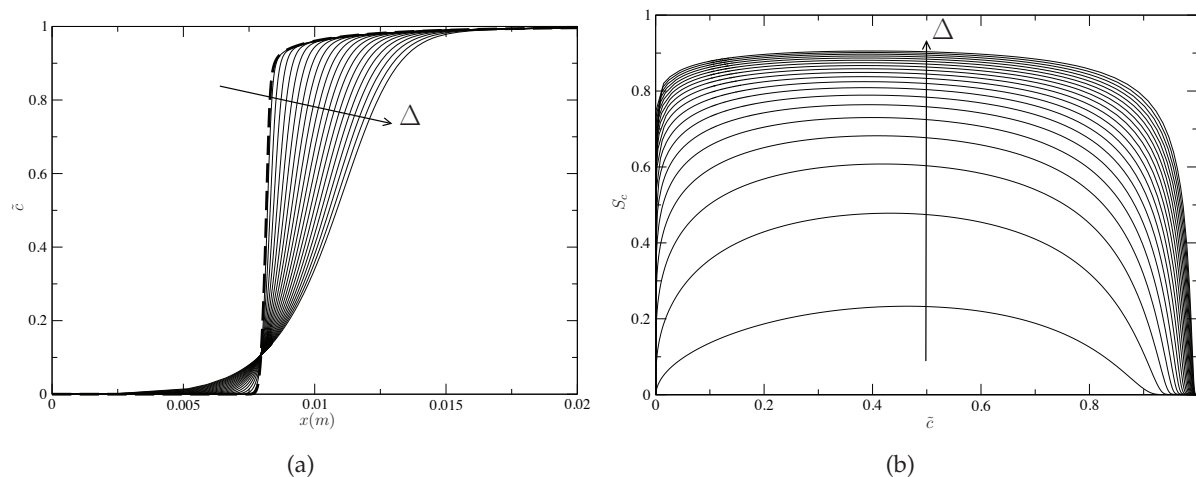


FIGURE 4.24: Réponse de flamme filtrée à 20 tailles de filtres par pas de $80 \mu\text{m}$. Tirets : réponse de flamme non-filtrée. Lignes : réponses de flamme filtrées. a) Représentation de \tilde{c} en fonction de l'espace. b) Représentation de Sc en fonction de \tilde{c} .

Les résultats nous incitent à filtrer le terme $\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}$ avec une distribution de Dirac :

$$\tilde{\omega}_{Y_{NO}}^{BG}(\tilde{Y}_{NO}, \tilde{Z}) = \int_{-\infty}^{+\infty} \omega_{Y_{NO}}(Y_{NO}^*, Z) \delta(Y_{NO}^* - \tilde{Y}_{NO}) dx, \quad (4.51)$$

avec δ la distribution de Dirac. L'étude présentée dans cette sous-section a été faite pour une flamme 1D filtrée. Le modèle est validé en turbulent dans le chapitre suivant.

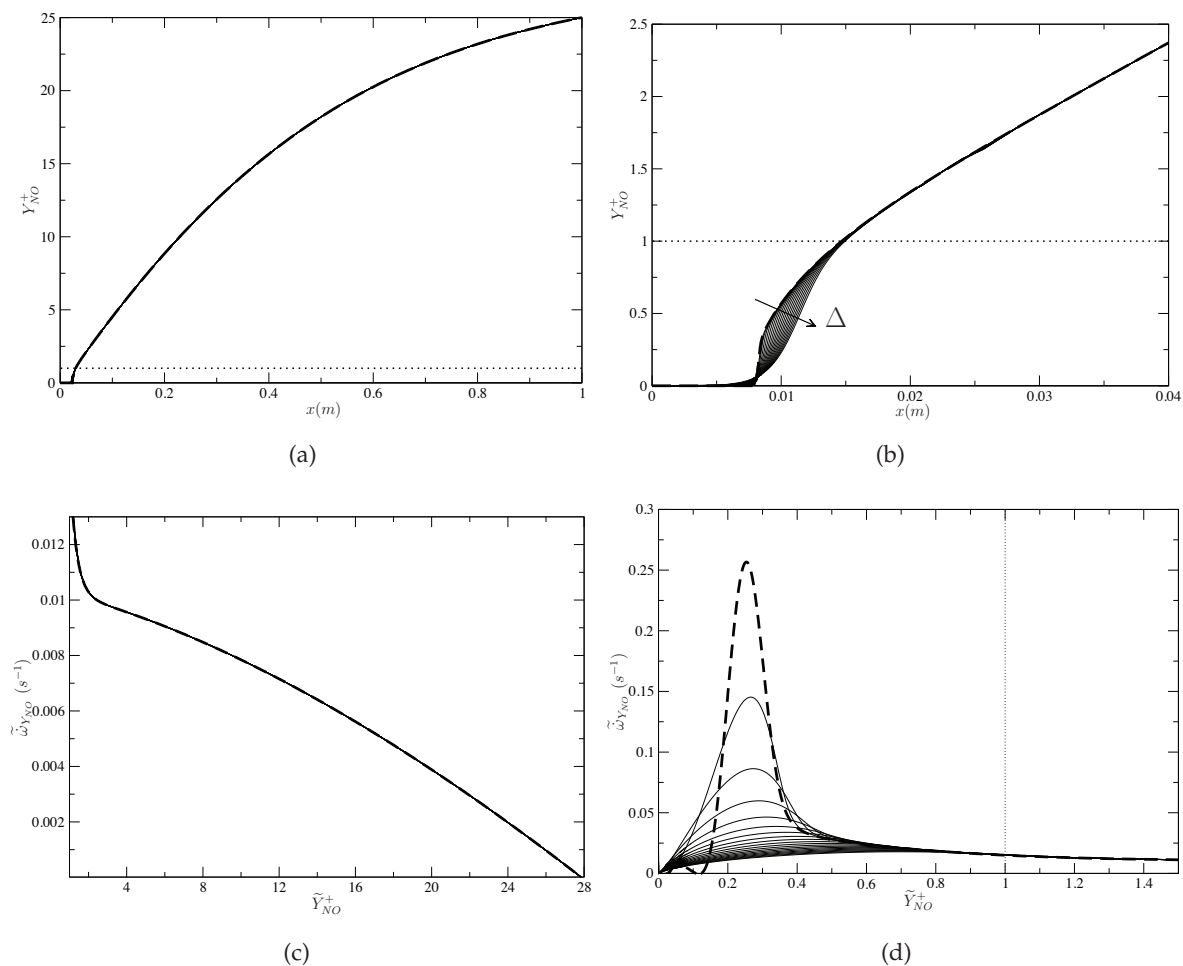


FIGURE 4.25: Réponse de flamme filtrée à 20 tailles de filtres par pas de $80 \mu m$. Tirets : réponse de flamme non-filtrée. Lignes : réponses de flamme filtrées. Points : $Y_{NO}^+ = 1$. a) et b) Représentation des réponses de flamme dans l'espace physique. c) et d) Représentation des réponses de flamme dans l'espace Y_{NO}^+ .

Chapitre 5

Validation du modèle, application à la flamme de Sandia D

Sommaire

5.1	Configuration expérimentale	100
5.2	Paramètres de calcul	102
5.2.1	Calculs préliminaires	102
5.2.2	Caractéristiques des maillages	104
5.2.3	Paramètres de tabulation	105
5.3	Résultats	109
5.3.1	Etude des champs moyens	109
5.3.2	Impact du schéma cinétique	115
5.4	Etude topologique de la flamme	117
5.4.1	Etude du régime de combustion	117
5.4.2	Mise en évidence d'une dissymétrie de l'écoulement	119
5.4.3	Etude des émissions de monoxyde d'azote	121
5.5	Conclusion	122

5.1 Configuration expérimentale

Dans le cadre du projet TNF (Turbulent Non-premixed Flame), une série de flammes accrochées par pilote ont fait l'objet de mesures expérimentales poussées et précises. Cette campagne de mesure constitue un vivier important mis à la disposition des numériciens pour la validation de solveurs ou de modèles. Le dépouillement des mesures expérimentales a fait l'objet de nombreuses publications, notamment quant à la structure de flamme : Barlow *et al.* [5, 6, 7, 8] ou encore Schneider *et al.* [116]. La configuration retenue pour valider le modèle précédemment exposé est une de ces flammes : la flamme de Sandia D. Une visualisation de la flamme est montrée en figure 5.1. Cette configuration est caractérisée par trois jets. Le jet annulaire central est formé d'un mélange riche composé à 25% de méthane et 75% d'air en volume et à une température de 291 K. Ce jet est entouré de 72 flammes pilotes pauvres d'un mélange de C_2H_2 , H_2 , air, CO_2 et N_2 avec la même enthalpie et le même équilibre qu'un mélange méthane/air à une richesse de 0.77. Dans le cadre de ces travaux, cet écoulement est considéré comme une



FIGURE 5.1: Photographie de la flamme dite de Sandia D [2]

solution homogène de gaz brûlés issue d'une combustion méthane/air à une richesse de 0.77. L'ensemble évolue dans un coflow d'air à 294 K. Les propriétés thermodynamiques de chacun des trois écoulements peuvent être décrites par une fraction de mélange dont les propriétés sont recensées dans le tableau 5.1. A titre de renseignement, la fraction massique stœchiométrique pour les conditions référencées dans le tableau est 0.351. L'injection de fuel se fait par un tube

	Fuel	Oxydant
Z	1.0	0.0
Y_{CH_4}	0.1576	0.0
Y_{O_2}	0.198	0.2321
Y_{N_2}	0.6428	0.7555
Y_{AR}	0.0016	0.0124
$T[K]$	291.0	294.0
$H[J/g]$	-737.74	-7.13

TABLE 5.1: Propriétés thermodynamiques de la condition fuel et de la condition oxydant utilisées pour confectionner la table FPI.

de diamètre D , égal à 7.2 mm. Le diamètre d'injection des flammes pilotes est lui égal à $2.53 \times D$. Les vitesses moyennes et les fractions de mélange de chaque écoulement sont précisées dans le tableau 5.2. Dans les conditions décrites, les flammes pilotes contribuent à hauteur de 6% à l'énergie thermique produite par le brûleur et le nombre de Reynolds basé sur l'écoulement dans le tube d'injection est égal à 22 400. Les mesures expérimentales concernant les espèces et la température sont effectuées avec la méthode de Raman-Rayleigh et sont disponibles à différentes hauteurs : 1, 2, 3, 7.5, 15, 30, 45, 60 et $75 \times D$. La précision accordée à ces mesures est de l'ordre de 3% pour la température, 5% pour les espèces majoritaires et 15% pour le NO. Les mesures des composantes de la vitesse sont disponibles aux mêmes hauteurs ainsi que dans le plan de sortie. Ces mesures, effectuées avec la méthode LDV à deux composantes, proviennent de TU Darmstadt.

	Jet principal	Flammes pilotes	Coflow d'air
Diamètre	7.2 mm	18.12 mm	300.0 mm
Vitesse moyenne	49.6 m.s ⁻¹	11.4 m.s ⁻¹	0.9 m.s ⁻¹
Fraction de mélange	1	0.271	0

TABLE 5.2: Conditions limites de la flamme de Sandia D.

5.2 Paramètres de calcul

5.2.1 Calculs préliminaires

Le choix de la configuration expérimentale calculée a été motivé par la présence de mesures de NO_x . Cependant, la simulation numérique d'une telle configuration représente un véritable challenge de par le nombre de Reynolds important et de la forte disparité des échelles qui caractérisent l'écoulement. En effet, si l'injection de fuel se fait au travers d'une section de diamètre égale à 7.2 mm, les lèvres du brûleur sont épaisses de 0.25 mm et la longueur de flamme est très importante : environ 30 cm. La bonne description de l'écoulement n'est *a priori* possible que si la condition d'injection est correctement modélisée et si la dynamique de flamme est correctement capturée. Un paramètre clef pour le respect de ces deux conditions est le maillage.

Par ailleurs, si de nombreux efforts ont été effectués par la communauté scientifique pour calculer cette flamme en LES ([119, 143, 60, 57, 58, 56, 59, 63, 146, 136]), tous ces travaux ont été effectués avec des solveurs structurés à l'exception des travaux de Kemenov *et al.* [62, 63]. Pour ces travaux, les auteurs modélisent un tube d'une profondeur de $1 D$. Le solveur (YALES2) mis à disposition pour ces travaux de thèse est un solveur non-structuré, cette particularité offre des perspectives supplémentaires quant à la confection d'un maillage qui permettrait une meilleure modélisation de la condition d'injection. Il est dès lors envisageable de modéliser une plus grande partie du tube d'injection ou de mieux résoudre l'écoulement au dessus de la lèvre du brûleur. Dans ce contexte, différents calculs préliminaires ont été réalisés afin de présenter la meilleure stratégie quant à la modélisation de la condition d'injection. Le but de cette sous-section n'est pas d'exposer tous les calculs effectués durant ces travaux de thèse mais de permettre au lecteur de comprendre la stratégie de modélisation mise en place.

L'essentiel de ces calculs préparatoires ont consisté dans le calcul d'un domaine restreint au système d'injection. Ce domaine de calcul amoindri permet d'étudier la convergence en maillage et d'évaluer la réponse du solveur à la modélisation de la condition limite d'injection du fuel. La démarche effectuée a consisté dans la confection de différents maillages et dans le test de différents paramètres. Ces calculs ont révélé que les forts gradients sur les profils de vitesse moyenne ne peuvent être résolus qu'au prix d'un maillage dense dans le tube d'injection. Les seuls résultats convenables ont été obtenus avec une taille caractéristique de maille égale à $\Delta_x = 1.8 \cdot 10^{-4}$ m dans le tube d'injection. Mailler l'injection avec une taille de maille plus faible entraînerait un surcoût de calcul très important, en effet la vitesse étant maximale au niveau de l'injection, c'est dans cette région que la condition CFL est limitante. Le domaine maillé pour évaluer la condition d'injection modélisée inclut une longueur de tube de 10 cm ainsi que la condition d'entrée associée aux flammes pilotes. Seule la section parallèle à l'injection correspond à une condition de sortie. Le jet est donc confiné et le coflow d'air n'est pas modélisé. Dans ce contexte, il n'est pas pertinent d'étudier l'expansion du jet, seul le profil de vitesse dans le plan de sortie est pertinent. Le champ de vitesse moyenne ainsi qu'un champ instantané de la température est représenté sur la figure 5.2. Le profil de vitesse imposé sur la condition d'entrée est le suivant

$$\frac{v}{v_{max}} = \frac{1}{\beta} \left(\frac{r}{0.5D} \right)^{\frac{1}{n}}, \quad (5.1)$$

avec $n = 6.6$, $\beta = 0.807$, v est la vitesse moyenne et v_{max} est la vitesse moyenne maximale.

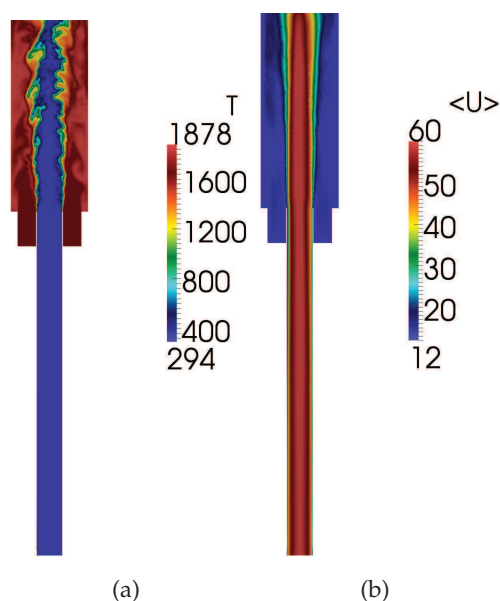


FIGURE 5.2: a) Champ instantané de la température. b) Champ de la vitesse moyenne.

Le profil de vitesse imposé correspond au profil de vitesse moyen dans un tube de diamètre D dont la turbulence serait complètement établie à un nombre de Reynolds de 22 400. Il est également en bon accord avec le profil mesuré en sortie d'injection. Les résultats obtenus sont illustrés sur la figure 5.3. Ces résultats sont en très bon accord avec les mesures expérimentales si la condition mur glissant est imposée. La nécessité d'utiliser une telle condition provient sans doute du fait qu'à ce nombre de Reynolds la taille de maille choisie ne permet pas de résoudre la couche limite à la paroi de l'injecteur. D'autres calculs ont montré qu'il était possible d'avoir des résultats comparables en maillant un tube profond de $1 D$. C'est cette dernière approche qui a été retenue pour modéliser l'ensemble de la flamme. Précisons que le niveau de turbulence en sortie d'injection est contrôlé par le niveau de turbulence imposé en entrée. Cette turbulence correspond à une turbulence homogène isotrope basée sur un spectre de Passot-Pouquet [102] injectée avec une vitesse moyenne de $11.4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

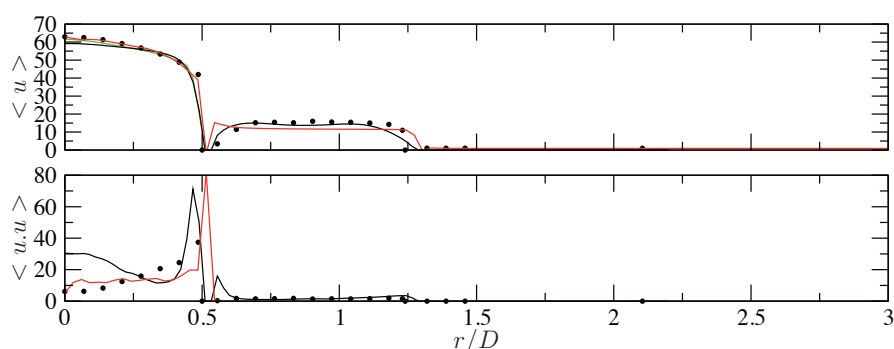


FIGURE 5.3: Vitesse moyenne et RMS dans le plan de sortie de l'injecteur. Vert : profil imposé sur la condition d'entrée et correspondant à l'équation 5.1. Rouge : profil calculé avec la condition mur non-glissant. Noir : profil calculé avec la condition mur glissant.

5.2.2 Caractéristiques des maillages

La plupart des calculs présents dans la littérature n'excède pas 10 millions de cellules. Cependant, compte tenu des particularités exposées dans la section précédente et des calculs préliminaires, un premier maillage dénommé M1 a été créé. Ce maillage est composé de 43 millions de tétraèdres. Le domaine maillé inclut un tube d'injection d'une longueur égale à $1 D$. Il est profond de $100 D$ et son diamètre est égal à $24 D$. le maillage a été conçu de façon à avoir 40 cellules dans le diamètre d'injection et trois cellules dans l'épaisseur de la lèvre du brûleur. Ce maillage global ainsi qu'un zoom sur la sortie d'injection sont illustrés sur la figure 5.4. Par

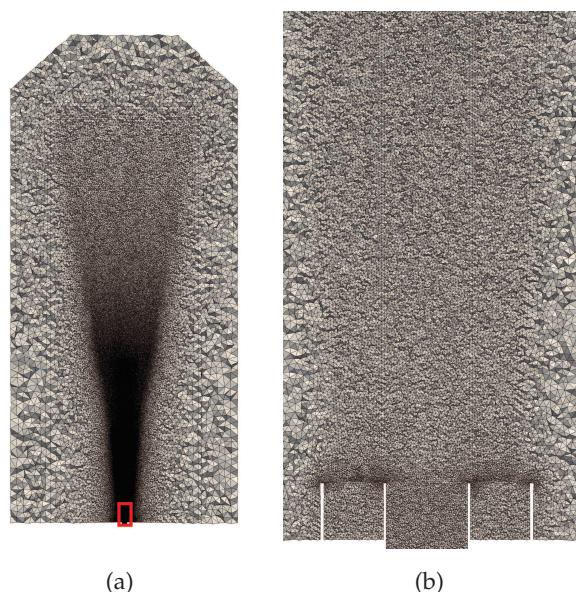


FIGURE 5.4: Visualisation du maillage M1.

ailleurs, le solveur utilisé dans le cadre de ces travaux a la particularité de pouvoir effectuer un raffinement du maillage automatique et homogène. Si on prend l'exemple d'un maillage composé de tétraèdres, chaque arête de tétraèdre est scindée en son milieu. Il en résulte que chaque tétraèdre est découpé en huit tétraèdres. La procédure de raffinement homogène permet l'étude de la convergence en maillage des calculs LES. C'est dans ce contexte, et dans le but d'étudier l'influence de la résolution du maillage sur un calcul LES qu'un deuxième maillage dénommé M2 a été confectionné. Ce maillage a été obtenu par un raffinement homogène du maillage M1, il est donc composé de 347 millions de tétraèdres. Les paramètres des deux maillages sont récapitulés dans le tableau 5.3.

Maillage	M 1	M 2
nombre de tétra, 10^6	43	347
Δ_{min} , dans la lèvre du brûleur	$82 \mu\text{m}$	$41 \mu\text{m}$
Nombre de tétra dans le diamètre du tube d'injection	40	80

TABLE 5.3: Paramètres des maillages M1 et M2.

5.2.3 Paramètres de tabulation

Le chapitre 2 fait état des différentes méthodes d'évaluation des coefficients de transport (viscosité et coefficients de diffusion). Ce chapitre expose aussi le coût de calcul important que représente le calcul de ces coefficients selon les lois de la cinétique des gaz. Si les configurations stationnaires peuvent se permettre ce surcoût important, les solveurs CFD nécessitent eux l'emploi de méthodes simplificatrices fortes. Ceci étant, dans le contexte de la chimie tabulée, il peut y avoir un problème de cohérence entre les paramètres utilisés lors du calcul de la cinétique chimique *a priori* et le calcul des propriétés de transport des paramètres de tabulation. D'autre part seuls les calculs des coefficients de transport complexes permettent d'obtenir les bonnes vitesses de flamme. La figure 5.5 illustre les différences de vitesse observées entre les deux modèles de transport possibles. Dans ce contexte, nous nous sommes intéressés aux effets de Lewis variables pour la tabulation de la chimie. Cette sous-section expose les avantages et les inconvénients de ces deux modèles de transport ainsi que les propriétés des tables chimiques utilisées pour le calcul de la flamme de Sandia D.

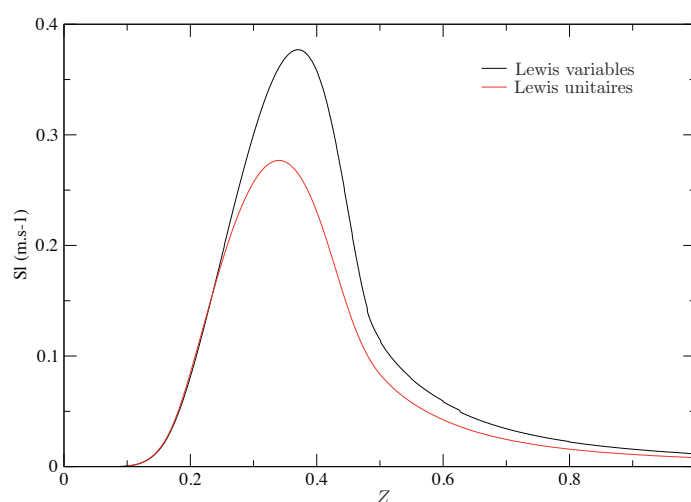


FIGURE 5.5: Comparaison des vitesses de flammes S_L pour les conditions thermodynamiques de la flamme de Sandia D : Lewis variables (trait noir) et Lewis unitaires (trait rouge).

5.2.3.1 Modèle complexe

Ce procédé représente la méthode conventionnellement utilisée puisqu'elle est la seule à donner les bonnes vitesses de flamme et que, par ailleurs, les mécanismes réactionnels sont développés de façon à être utilisés avec ces propriétés de transport. Ce modèle présente les avantages et inconvénients suivants :

- Le modèle de transport complexe permet une prise en compte des effets de diffusion différentielle dans la direction normale au front de flamme, ce qui a pour effet le calcul des bonnes vitesses de flammes.
- Cependant, dans le cadre d'une combustion non pré-mélangée les effets de diffusion différentielle ne se font pas nécessairement dans la direction normale au front de flamme.
- Ces effets de diffusion différentielle ne permettent pas de définir une fraction de mélange constante le long du front de flamme. Ce phénomène est illustré par la figure 5.6.

- Dans le contexte des méthodes de chimie tabulée, la vitesse de flamme est directement fonction de la diffusion de la variable de progrès. Or si nous avons vu dans le chapitre 2 que la diffusion d'une espèce pouvait être approximée par l'emploi d'un nombre de Schmidt, si cette dernière est composée de plusieurs espèces, alors il devient impossible de déterminer ce nombre de Schmidt.

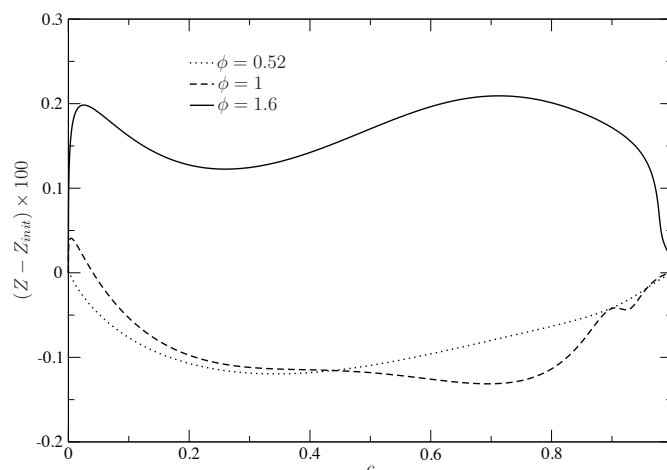


FIGURE 5.6: Evolution de Z calculé selon la formulation de Bilger (équation 3.16) à travers une flamme 1D méthane/air à pression atmosphérique pour trois richesses.

5.2.3.2 Modèle aux nombres de Lewis unitaires

Ce modèle simplifié calcule les coefficients de transport de la même façon que les solveurs CFD. A titre de rappel, ce modèle procède au calcul de la viscosité par une loi de puissance ou la loi de Sutherland. La diffusion de la température est calculée à partir du nombre de Lewis et les coefficients de diffusion des espèces sont calculés à partir d'un nombre de Schmidt. Ce modèle est communément appelé modèle à (nombres de) Lewis unitaire(s). Outre la cohérence entre le calcul des coefficients de transport dans un solveur CFD et dans un solveur de cinétique chimique complexe, ce modèle présente des avantages et des inconvénients vis-à-vis du modèle à transport complexe. Ces différences sont les suivantes :

- Les coefficients de transport des espèces sont calculés selon une hypothèse forte. La topologie et la vitesse de flamme ainsi obtenue est très différente celles observées et mesurées expérimentalement.
- Cependant, ces réponses de flammes sont proches de celles des flammes non pré-mélangée dans l'espace $(Z, Y_c, \dot{\omega}_{Y_c})$. Cette propriété mise en avant par Fiorina *et al.* [41] et Vreman *et al.* [136] est vraie à deux conditions : il est nécessaire que le taux de dissipation scalaire soit faible et que la température soit élevée.
- Il y a une cohérence totale entre le calcul de la diffusion de la variable de progrès et de la fraction de mélange entre le solveur CFD et le solveur Cantera.
- Z est constant le long de la flamme 1D.

5.2.3.3 Caractéristiques des tables chimiques

Les calculs de la flamme de Sandia D ont été entrepris afin de valider le modèle NOMANI, et l'emploi de ce modèle nécessite une table PCM-FPI pour modéliser la chimie carbonée et une table pour modéliser la chimie des gaz brûlés. Dans l'optique d'évaluer l'influence des modèles de transport, quatre tables chimiques ont été confectionnées : deux tables PCM-FPI et deux tables pour la chimie des gaz brûlés. De cette façon chaque zone de la flamme peut être décrite sous l'hypothèse des nombres de Lewis unitaires ou non. Les tables PCM-FPI sont des tables 4D ($100 \times 100 \times 16 \times 16$). Les directions de \tilde{Z} et \tilde{c} sont maillées avec 100 points distribués non-uniformément de façon à mieux décrire la zone à fort avancement et proche stœchiométrique de façon à mieux décrire les forts gradients. Ces tables ont 16 points dans les directions de S_Z et S_c distribués de façon à décrire au mieux les conditions où les ségrégations sont faibles. La méthode utilisée pour raffiner le maillage est expliquée dans la thèse de Naudin [97]. La variable de progrès a été choisie de façon à être bijective en espace pour l'ensemble des richesses rencontrées dans les conditions de la flamme de Sandia. Elle est définie par

$$Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2} + Y_{H_2O}. \quad (5.2)$$

Si l'on définit Z_l comme étant la richesse minimale à laquelle il est possible de calculer une flamme stationnaire, alors les tables chimiques ne comportent aucune information quant à la réactivité ou encore quant aux propriétés thermodynamiques d'un mélange qui serait à une richesse inférieure à Z_l . Les termes sources dans cette zone hors inflammabilité sont imposés comme nuls. Cependant un traitement particulier est effectué pour la température. Il est possible de normaliser le profil de la température pour la dernière flamme calculable ($Z_l = 0.09$) :

$$T^*(c) = \frac{T(c, Z_l) - T(c = 0, Z_l)}{T(c = 1, Z_l) - T(c = 0, Z_l)}. \quad (5.3)$$

Les profils de température hors des limites d'inflammabilité sont ensuite retrouvés selon la relation :

$$T(c, Z) = T^*(c) \times (T^{eq}(Z) - T_u(Z)) + T_u(Z). \quad (5.4)$$

Seul le monoxyde d'azote a fait l'objet d'un post-traitement dans ces travaux. Mais on peut imaginer que le procédé appliqué à la température puisse être étendu à d'autres fractions massiques d'espèces.

Pour ce qui est de la table dédiée à la chimie azotée dans les gaz brûlés, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédemment elles sont 2D. Le faible nombre de dimension de ces tables nous permet d'augmenter la précision dans toutes les directions de la table. C'est ainsi que ces tables ont été construites avec 400 pts dans la direction de Z et 300 pts dans la direction de Y_{NO} . Avant de présenter les calculs LES obtenus avec les différentes tables, il est possible d'effectuer une première comparaison des informations contenues dans les deux tables FPI. La figure 5.7 illustre l'évolution de la température, de $\dot{\omega}_{Y_c}$ et de $\dot{\omega}_{NO}$ pour ces deux tables quand les ségrégations sont nulles. La première remarque concerne la température. En effet, la température a la même évolution en fonction de c et Z quelque soit le modèle de transport utilisé. Les différences existent et sont comparables pour ce qui est des termes sources. Le modèle à nombres de Lewis unitaires sous-estime de 18% le terme source de la variable de progrès et sous-estime de 26% le terme source de NO dans le front de flamme.

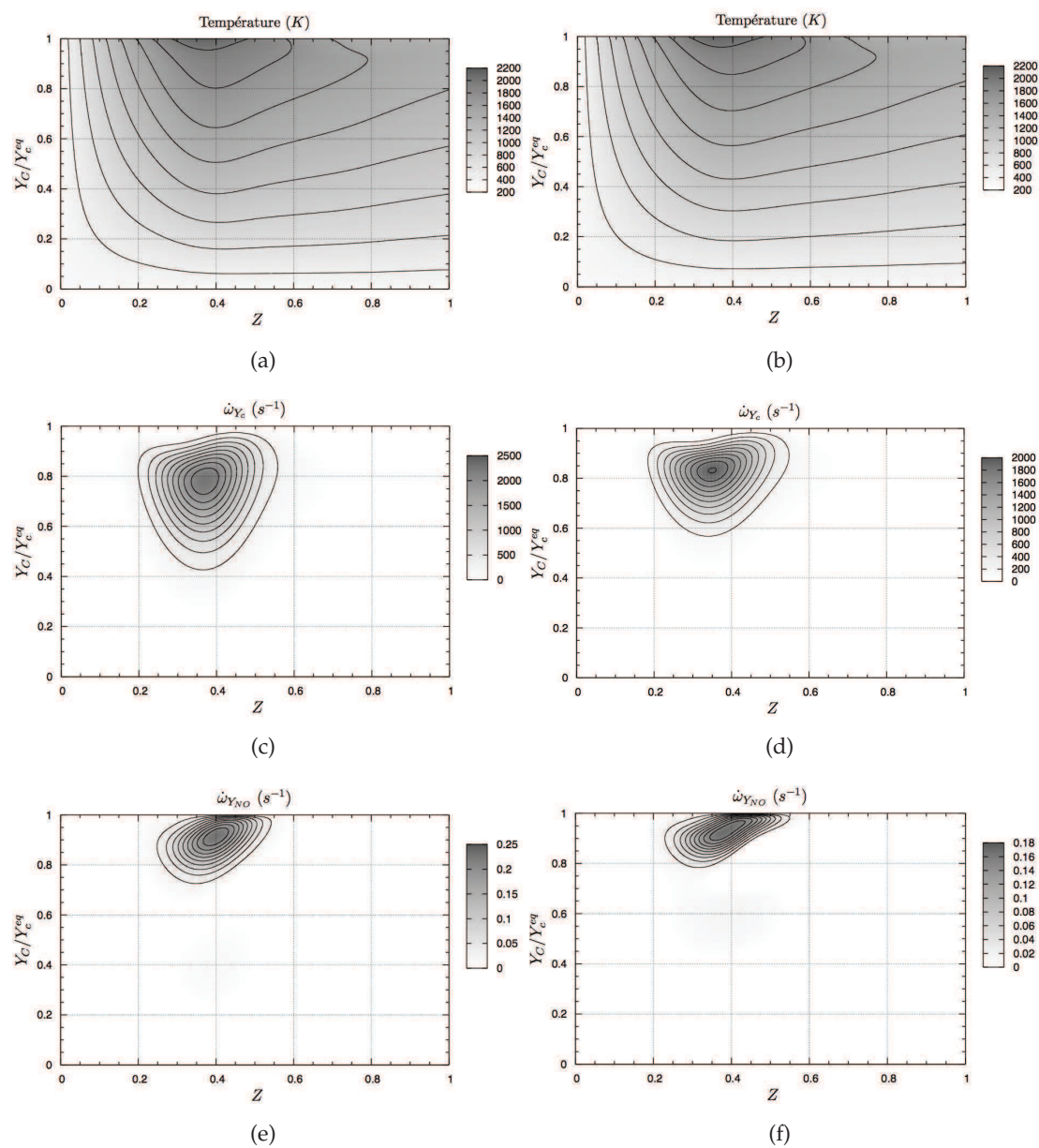


FIGURE 5.7: Evolution de la température, de $\dot{\omega}_{Y_C}$ et de $\dot{\omega}_{NO}$ représentés dans l'espace (Z, Y_C) , obtenus avec les nombres de Lewis variables (gauche) et nombres de Lewis unitaires (droite). a) et b) Iso-contours tous les 220 K. c) Iso-contours tous les 230 s^{-1} . d) Iso-contours tous les 190 s^{-1} . e) Iso-contours tous les 0.023 s^{-1} . f) Iso-contours tous les 0.017 s^{-1} .

5.3 Résultats

5.3.1 Etude des champs moyens

Les calculs de la flamme de Sandia D présentés dans ces travaux ont été effectués avec le modèle de combustion turbulente PCM-FPI et les équations de Naviers-Stokes sont fermées à l'aide du modèle de Smagorinsky dans sa version dynamique [46]. Les différents maillages et tables chimiques utilisés sont ceux présentés précédemment. Dans l'optique d'évaluer l'influence de chaque paramètre, quatre calculs ont été entrepris. Les paramètres définissant chacun de ces calculs sont précisés dans le tableau 5.4. Cette section expose les statistiques ef-

Calcul	1	2	3	4
Maillage	M1	M1	M2	M2
Modèle de transport	$Le_k \neq 1$	$Le_k = 1$	$Le_k \neq 1$	$Le_k = 1$
Temps d'accumulation des statistiques	50 ms	50 ms	80 ms	80 ms

TABLE 5.4: Différents cas de calcul.

fectuées sur l'axe du brûleur (dans la direction Z) et les statistiques radiales. Les statistiques radiales ont été effectuées sur 180 plans obtenus par une rotation successive de 1° . Avant de présenter les statistiques obtenues pour chacun des calculs il est intéressant de regarder le rapport de la viscosité dynamique turbulente sur la viscosité dynamique laminaire. Ce rapport est usuellement utilisé pour évaluer la résolution de la LES, il est représenté par la figure 5.8 pour deux champs instantanés. Le rapport de la viscosité turbulente sur la viscosité laminaire est en tout point inférieur à cinq. Cette figure illustre la bonne résolution de ces calculs LES. Les statistiques concernant la fraction de mélange, la température, la vitesse ainsi que la fraction de monoxyde d'azote sont d'abord présentées puis sont ensuite discutées.

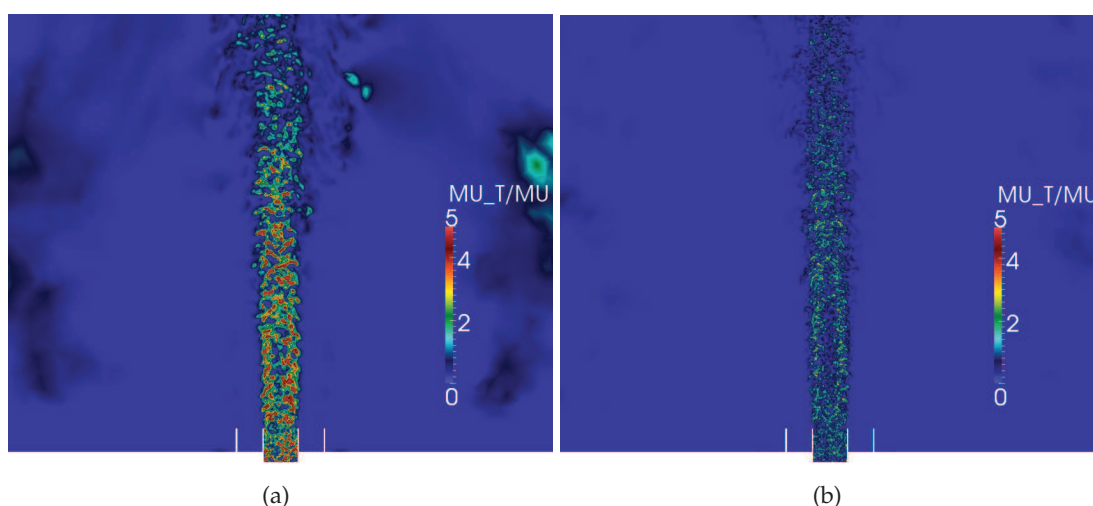


FIGURE 5.8: Rapport entre le viscosité dynamique turbulente et la viscosité dynamique laminaire. a) Maillage M1. b) Maillage M2. Le modèle de transport considère les nombres de Lewis unitaires.

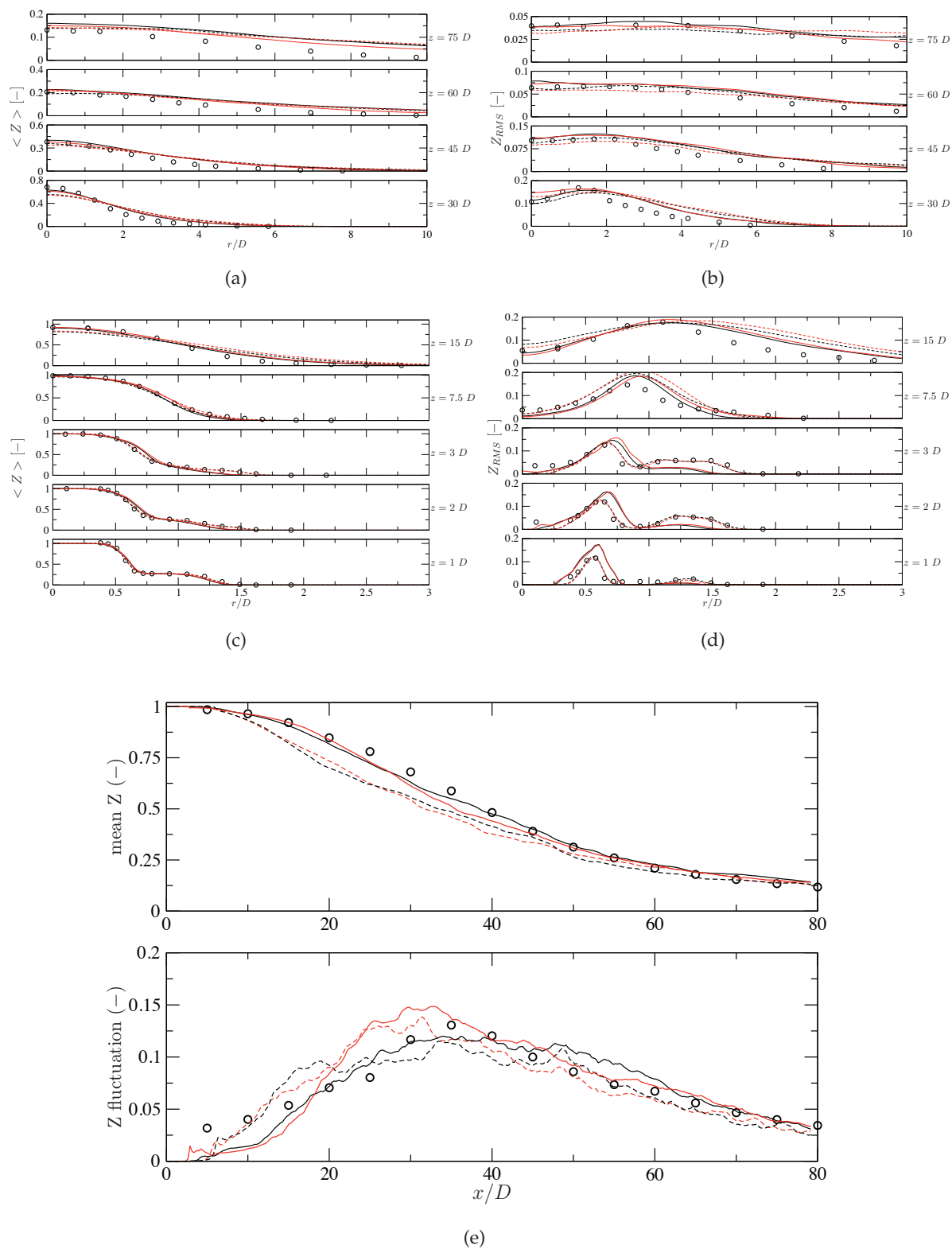


FIGURE 5.9: Comparaison des niveaux de fraction de mélange moyenne et de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.

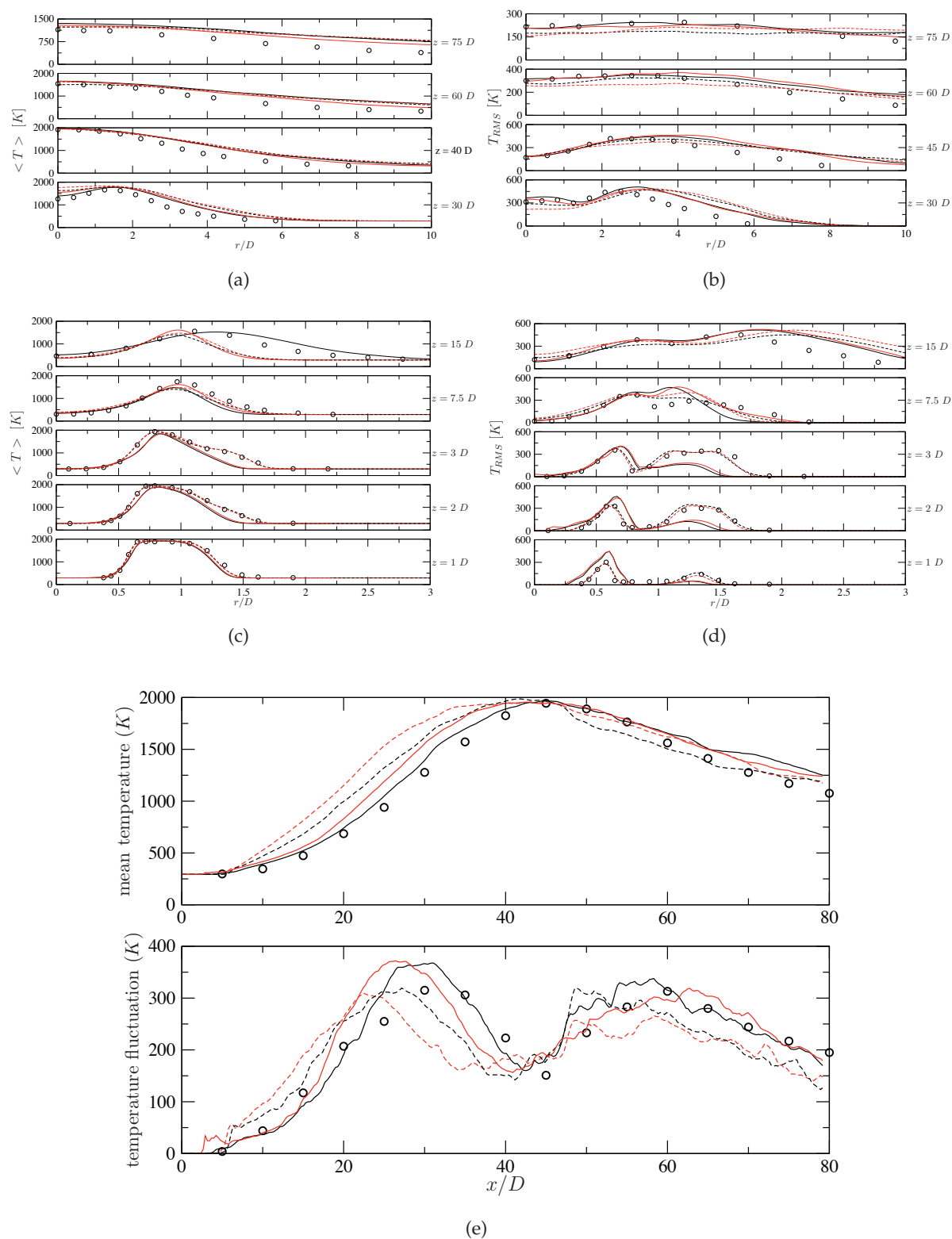


FIGURE 5.10: Comparaison des niveaux température moyenne et de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.

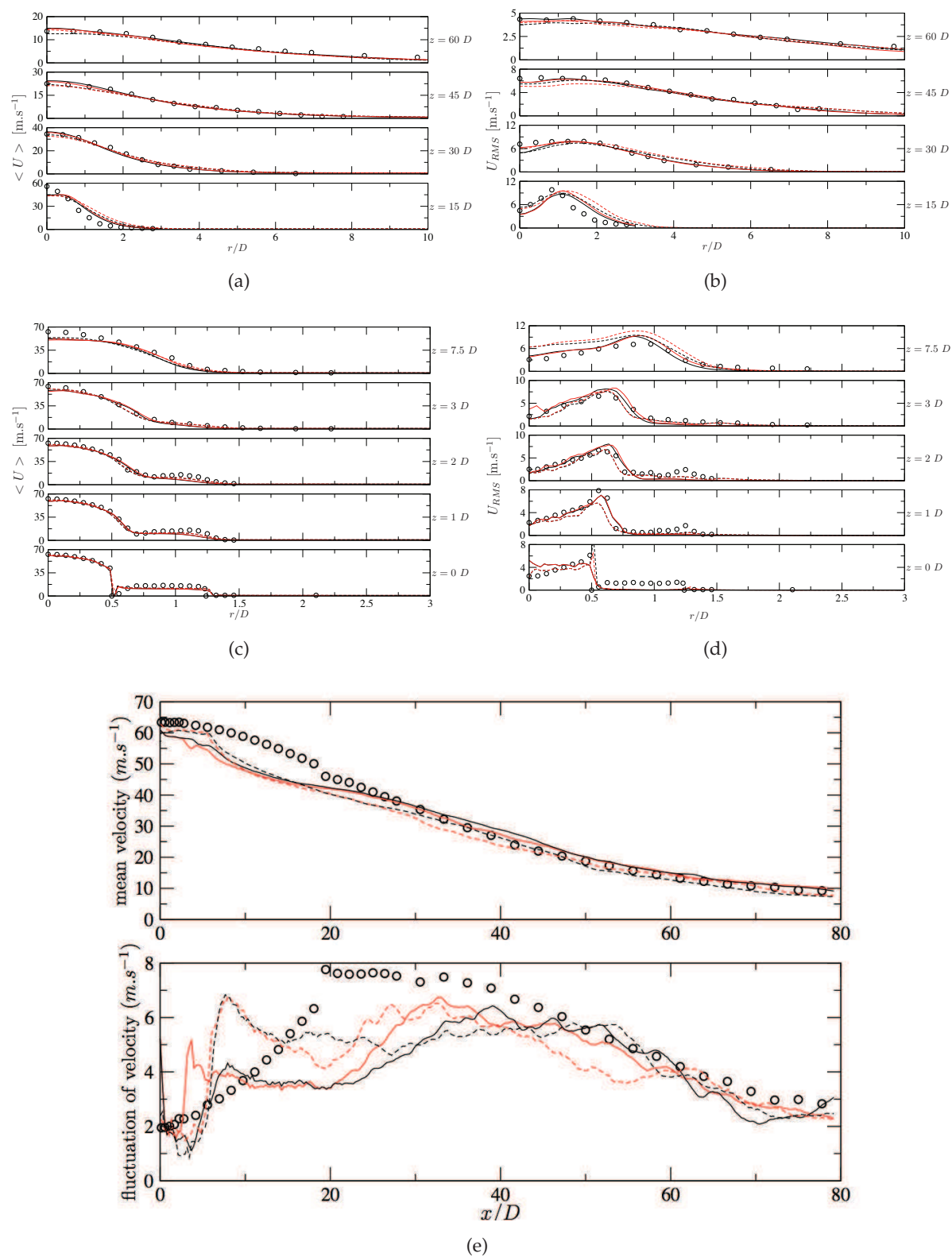


FIGURE 5.11: Comparaison des niveaux de vitesse axiale de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.

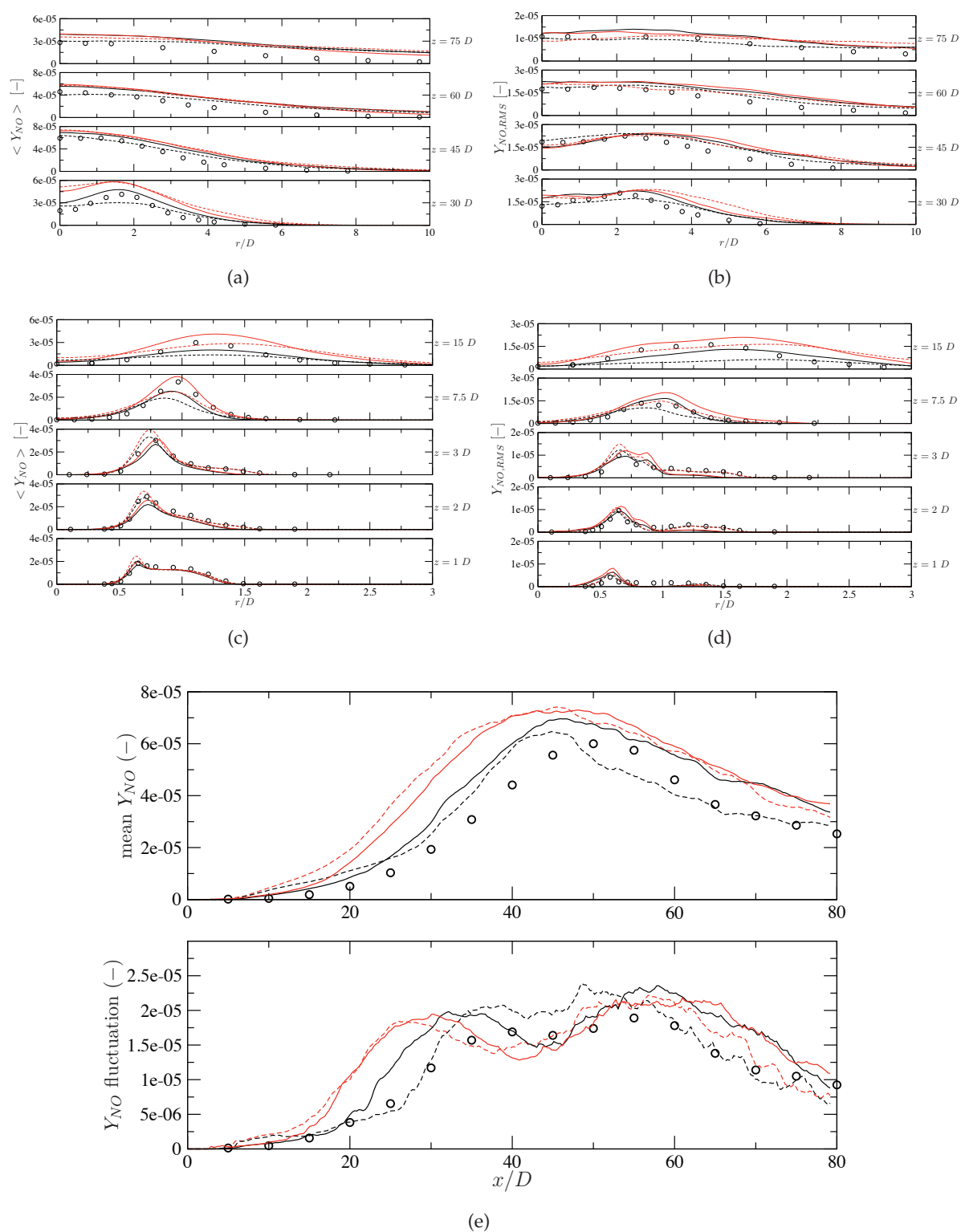


FIGURE 5.12: Comparaison des niveaux de fraction massique de monoxyde d'azote moyenne et de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.

Les figures 5.9, 5.10, 5.11 et 5.12 montrent un excellent accord entre les mesures expérimentales et les calculs numériques, tout particulièrement pour ce qui est des calculs effectués avec le maillage le plus raffiné. La figure 5.9 nous enseigne que seul le maillage M2 est capable de prédire correctement le mélange et ceci quelque soit le modèle de transport utilisé.

Les mêmes conclusions ne peuvent être faites en ce qui concerne les statistiques faites sur la température et représentées par la figure 5.10. Seul le calcul effectué sur le maillage le plus fin assorti du modèle de transport à Lewis unitaires, (cas de calcul 4), permet de prédire la bonne longueur de flamme. A même niveau de mélange, la température est plus élevée avec le modèle à Lewis variable. Ce phénomène est attribué à la réactivité qui est 18% plus élevée lorsque les phénomènes de transport complexes sont considérés. Le cas 4 prédit également correctement le profil en double bosse des fluctuations de température le long de l'axe du brûleur (figure 5.10(d)). Le premier pic est imputé à la fin du cône potentiel de fuel tandis que le deuxième correspond à la région où le mélange devient stœchiométrique en moyenne. En terme de statistiques radiales, nous pouvons ajouter que seul le cas 4 capture la bonne ouverture de jet en terme de température à $15 D$ et $30 D$.

En ce qui concerne la comparaison de la vitesse axiale, tous les cas de calculs présentent des statistiques radiales comparables en terme de niveaux moyens et de niveaux de fluctuations. La comparaison avec les mesures expérimentales sur l'axe du brûleur présente de nombreuses divergences, mais aucun cas de calcul ne se distingue des autres.

Comme nous l'avons vu dans la section précédente, le modèle à Lewis unitaires prédit des niveaux de NO inférieurs au modèle à Lewis variables. La tendance générale qui se dégage de cette étude statistique est la tendance générale à la sur-estimation du NO. Dans ce contexte, c'est le modèle qui prédit le taux de NO le plus faible qui s'approche le plus des valeurs expérimentales. Cependant, si on s'intéresse à la topologie des émissions de NO proches injecteur alors les meilleurs résultats semblent être ceux du cas de calcul 4.

Pour conclure, cette étude paramétrique a permis de mettre en avant l'influence de la résolution du maillage ainsi que l'influence du modèle de transport considéré durant le calcul *a priori* de la cinétique chimique. Ces calculs démontrent la nécessité d'avoir un maillage extrêmement raffiné au niveau de l'injection mais également dans la région du front de flamme et ceci afin de prédire la bonne longueur de flamme. Il est également recommandé d'utiliser le modèle de transport à nombres de Lewis unitaires pour calculer cette flamme non pré-mélangée. D'autres calculs dans d'autres régimes de combustion sont nécessaires pour déterminer si cette approche peut être généralisée à toutes les flammes en régime de combustion non pré-mélangée. Ces calculs ont également permis de mettre en évidence les excellents résultats donnés par le modèle NOMANI. Les meilleurs résultats ont été obtenus lorsque le bon mélange ainsi que la bonne température ont été capturés. Une visualisation, correspondant au cas 4, des champs moyens de la température ainsi que la fraction de mélange et la fraction massique de NO sont représentés par la figure 5.13.

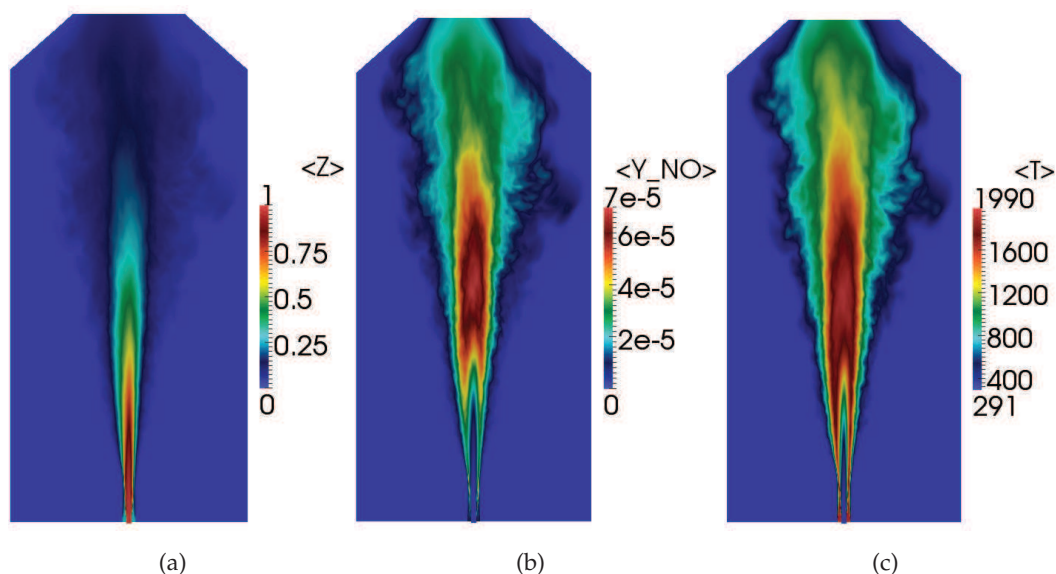


FIGURE 5.13: Champs moyens de la fraction de mélange (gauche), de la fraction massique de NO (milieu) et de la température (droite). Ces champs instantanés correspondent au cas de calcul 4 référencé dans le tableau 5.4.

5.3.2 Impact du schéma cinétique

L'objectif de cette thèse n'a pas été l'étude des mécanismes réactionnels menant à la formation des oxydes d'azote, mais l'écriture d'un modèle qui, lors d'un calcul LES, rende compte des effets du schéma cinétique. Afin d'évaluer la précision du modèle, il est nécessaire d'estimer l'erreur introduite par le schéma cinétique choisi pour la tabulation *a priori* de la chimie. C'est dans ce contexte que nous avons choisi de comparer les résultats obtenus avec le GRI-Mech 3.0 [122] avec un autre schéma cinétique disponible dans la littérature : le GRI-Mech 2.11 [45]. Entre la version 2.11 et la version 3.0 certains coefficients propres à la cinétique du monoxyde d'azote ont subi des modifications.

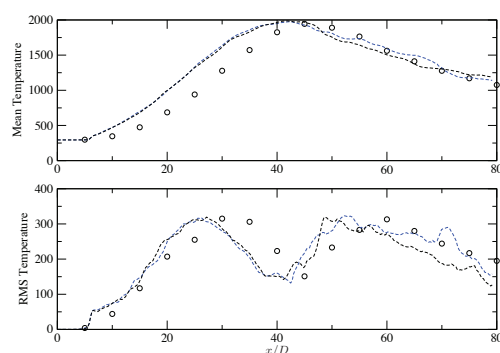


FIGURE 5.14: Comparaison des niveaux de température moyenne et de ses fluctuations. Les calculs ont été effectués sur le maillage M1 et le modèle aux nombres de Lewis unitaires. Tirets noirs : GRI-Mech 3.0. Tirets bleus : GRI-Mech 2.11. Symboles : valeurs expérimentales.

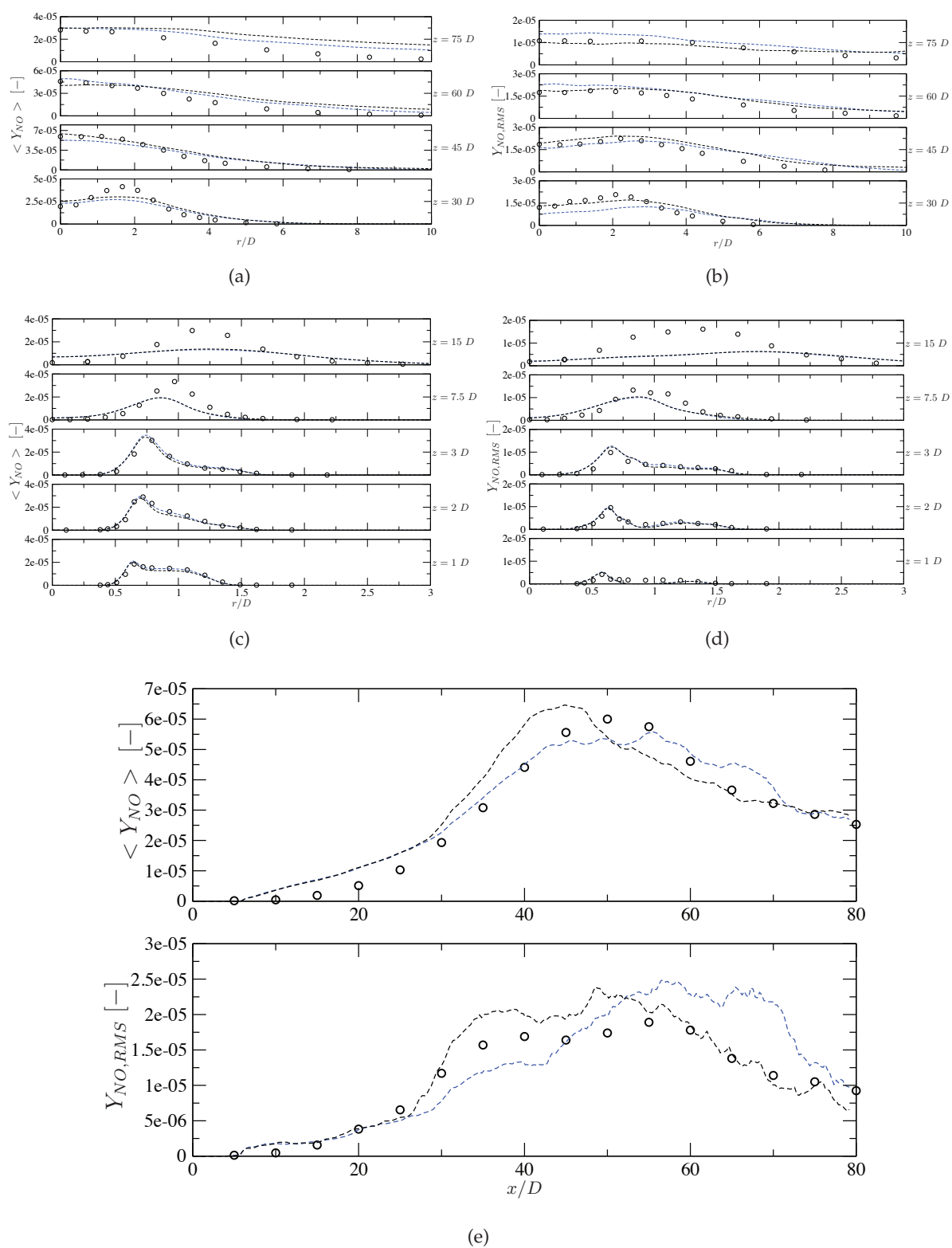


FIGURE 5.15: Comparaison des niveaux de la fraction massique de monoxyde d'azote moyenne et de ses fluctuations. Les calculs ont été effectués avec le maillage M1 et à Lewis unitaires. Tirets noirs : GRI-Mech 3.0. Tirets bleus : GRI-Mech 2.11. Symboles : valeurs expérimentales.

Pour une raison de coût de calcul évidente, ces calculs comparatifs n'ont pas été menés avec le maillage M2 mais avec le maillage le moins raffiné, à savoir le maillage M1. De plus ces calculs ont été effectués à Lewis unitaires. Les résultats concernant l'évolution de la température le long de l'axe du brûleur, illustrés par la figure 5.14, sont en très bon accord. Ceci correspond aux résultats attendus puisque les changements apportés au GRI-MECH dans sa version 3.0 concerne uniquement les réactions faisant intervenir les espèces azotés. En ce qui concerne les émissions de monoxyde d'azote, les résultats sont en accord avec de nombreux auteurs (Cao et Pope [23], Wang *et al.* [138] et Godel [50]) qui calculent une sous-estimation du NO lorsque le GRI-Mech est utilisé dans sa version 2.11. Ce phénomène est moins accentué pour les calculs présentés dans ces travaux puisque la sous-estimation calculée dans la littérature peut aller jusqu'à 30%. Il est vraisemblable que cette comparaison des deux schémas cinétiques est également dépendante du modèle considéré. La sous-estimation du GRI-Mech 2.11 peut être appréciée sur les statistiques radiales de la figure 5.15.

5.4 Etude topologique de la flamme

5.4.1 Etude du régime de combustion

Le calcul correspondant au maillage raffiné ainsi qu'au modèle à nombres de Lewis unitaires (cas de calcul n°4) présente les meilleurs résultats comparativement aux mesures expérimentales. C'est la raison pour laquelle cette section, qui dresse une étude brève de la topologie de la flamme de Sandia D, se base uniquement sur les calculs effectués dans ces conditions. Des champs instantanés de la température et de la fraction massique de NO sont illustrés par la figure 5.16. Sur cette dernière illustration, l'écoulement entourant le coeur potentiel est dominé par des structures de Kelvin-Helmoltz induites par le fort gradient de vitesse du jet principal et la vitesse des gaz brûlés issus des flammes pilotes. Nous attribuons cette caractéristique à la forte viscosité moléculaire des gaz brûlés produits par les flammes pilotes. Les figures 5.17(a) et 5.17(b) sont des scatter plots de la température en fonction de la fraction de mélange. L'échantillon de valeurs extraites des calculs numérique est égale au nombre de valeur expérimentale. Une partie de ces valeurs, qu'elles proviennent de mesures expérimentales ou de calculs numériques est souvent loin de la température à l'équilibre. L'existence de telles valeurs nous conforte dans l'idée que l'emploi d'un modèle à chimie infiniment rapide n'est pas approprié à ce niveau de raffinement de maillage. Cette conclusion justifie également les différences que l'on obtient en modifiant le modèle de transport utilisé lors du calcul *a priori* de la cinétique chimique.

Comme nous l'avons vu précédemment, le jet principal de la flamme de Sandia D est composé d'un pré-mélange très riche, et donc très peu réactif, même à fort avancement. Cette flamme est stabilisée par les flammes pilotes pauvres et le mélange avec le coflow d'air. Dans ce contexte, il est très difficile d'extraire les paramètres qui régissent les propriétés de la flamme. Afin de comprendre les mécanismes qui pilotent cette flamme nous nous sommes intéressés à l'indice de Takeno [144] qui est défini selon la relation suivante :

$$G = \frac{\nabla Y_f \cdot \nabla Y_o}{|\nabla Y_f \cdot \nabla Y_o|}, \quad (5.5)$$

où Y_f est la fraction massique de fuel et Y_o est la fraction massique d'oxydant . L'indice de

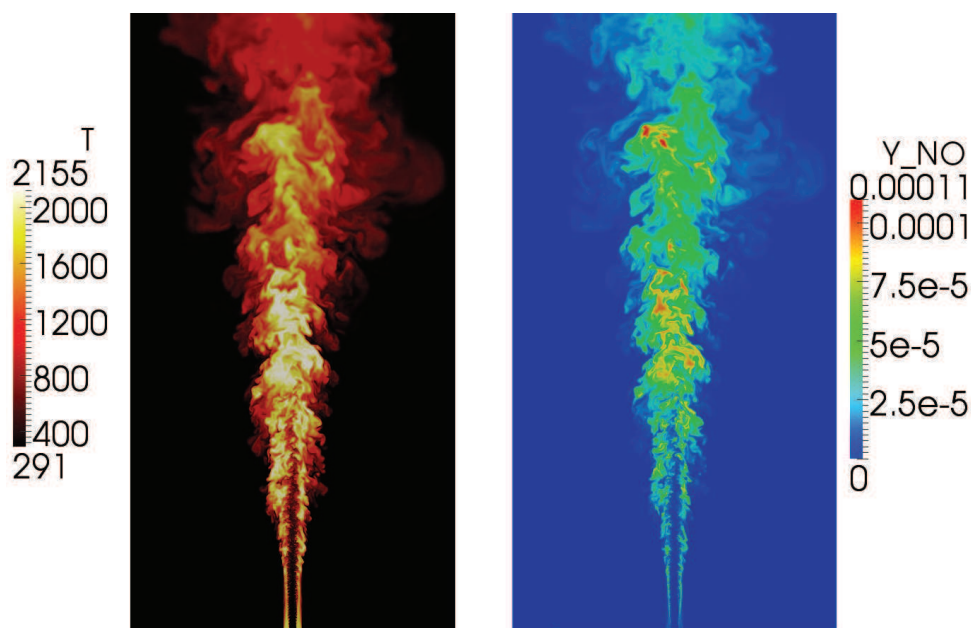


FIGURE 5.16: Champs instantanés de la température (gauche) et de la fraction massique de monoxyde d'azote (droite), ces champs correspondent au cas n°4.

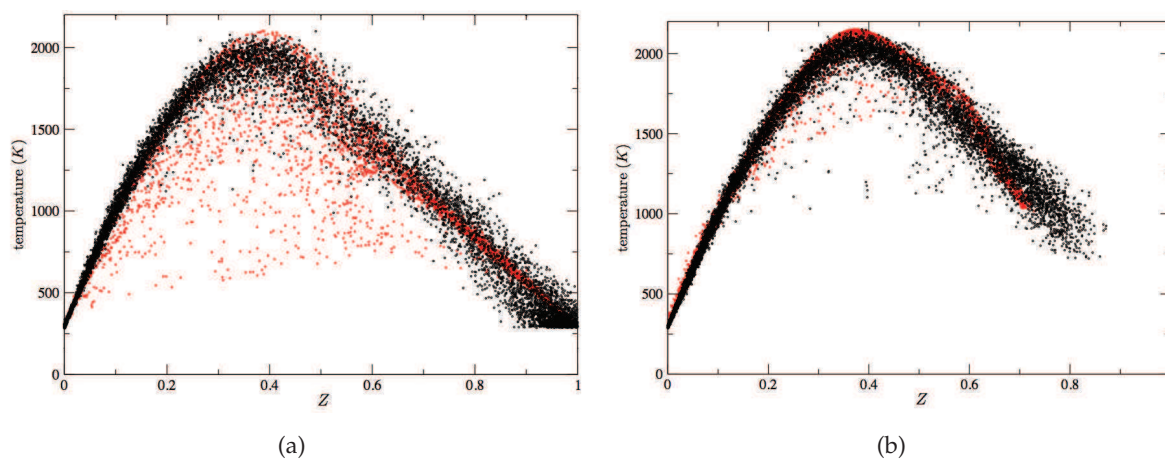


FIGURE 5.17: Scatter plot de la température en fonction de la fraction de mélange pour $x = 7.5D$ (gauche) et pour $x = 30D$ (droite). Noir : mesures expérimentales, rouge : simulation sur le maillage M2 et le modèle de transport à nombres de Lewis unitaires. 3000 valeurs expérimentales et numériques sont représentées.

Takeño est défini de façon à valoir -1 dans un régime de combustion non pré-mélangée et 1 dans un régime de combustion pré-mélangée. La figure 5.18 montre un champ instantané d'indice de Takeño, \tilde{c} et \tilde{Z} . La flamme de Sandia D se caractérise par la longueur importante de son cône potentiel composé d'un pré-mélange riche, qui correspond à une fraction de mélange comprise entre 0.6 et 1. La figure 5.18 illustre l'importance de ce cône potentiel à travers la représentation du champ moyen de la fraction de mélange. Cette figure nous montre que cette région est exclusivement pilotée par un régime de combustion pré-mélangée. Cependant, une fois la majorité du fuel consommé le régime dominant est celui d'une combustion non pré-mélangée. Il semble que le jet principal pilote la topologie générale de la flamme, ce qui tente à justifier la tabulation de flamme de pré-mélange pour le calcul de cette flamme.

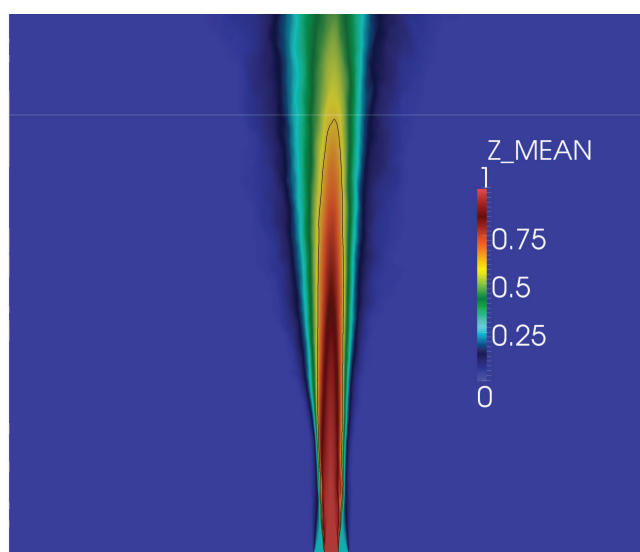


FIGURE 5.18: Champs moyen \tilde{Z} . Un iso-contour de la fraction de mélange égale à 0.6 est représenté par une ligne noire et la ligne blanche représente la hauteur $H = 32 D$.

5.4.2 Mise en évidence d'une dissymétrie de l'écoulement

Une seconde particularité de ces calculs de la flamme de Sandia D est la forte dissymétrie du jet en aval de l'injecteur, et ce malgré un temps d'accumulation des statistiques important. Cette dissymétrie peut être mise en évidence à travers la visualisation de la température à différentes hauteurs, comme le montre la figure 5.20. Ces modes à faibles fréquences sont typiques des écoulements de jets libres et ne peuvent être observés par une simulation RANS ou par une simulation LES grossière. Ces modes semblent évoluer lentement pendant le calcul et sont indépendants de l'injection de turbulence. Des calculs avec différents paramètres (modèle de sous-maille, injection turbulente ...) ont été réalisés, la conclusion est que les modes semblent être uniquement fonction de la résolution du maillage. L'existence de tels modes pose des problèmes lorsqu'il s'agit de comparer les résultats numériques avec les mesures expérimentales. Les mesures expérimentales ont été faites uniquement dans un plan. Cependant, afin de les comparer à nos calculs nous avons pris le parti de moyenniser les statistiques radialement.

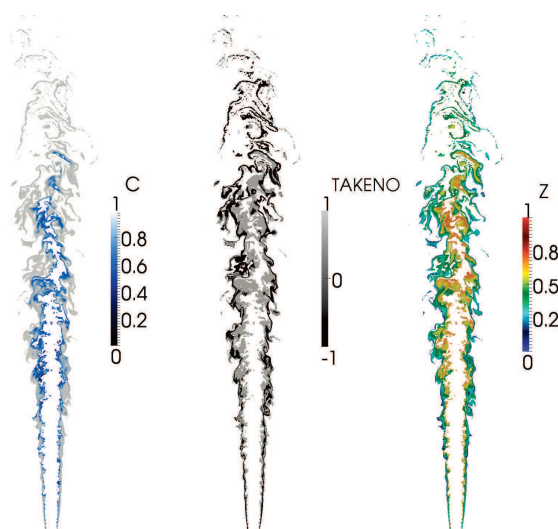


FIGURE 5.19: Champs instantanés conditionnés par $\tilde{\omega}_{Y_c} > 0.01$, colorés par \tilde{c} (gauche), l'indice de TakENO (milieu) et \tilde{Z} (droite). Un iso-contour de la fraction de mélange égale à 0.6 est représenté par une ligne rouge (milieu).

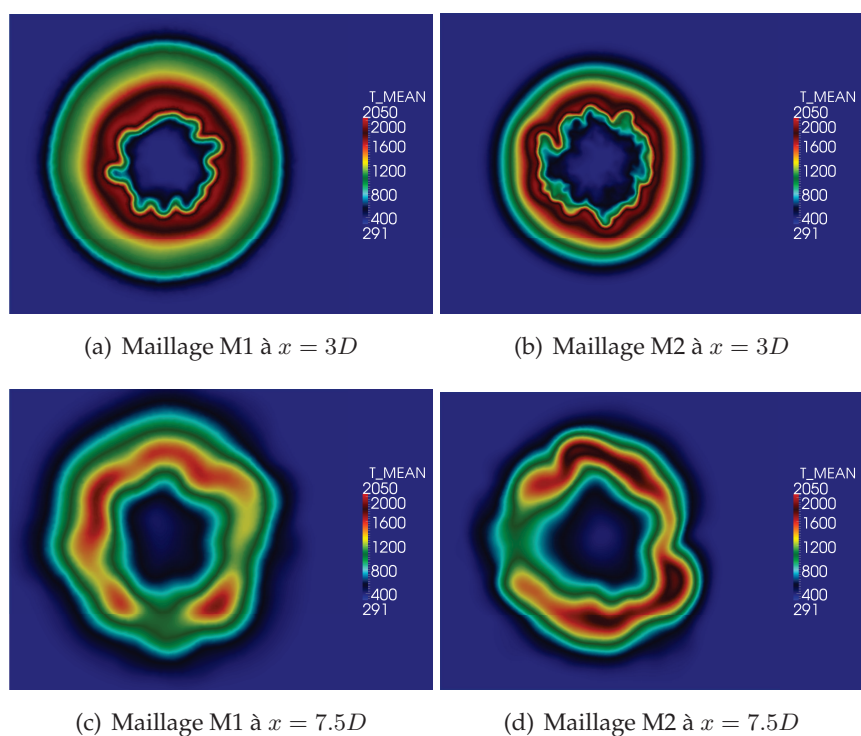


FIGURE 5.20: Illustration de la dissymétrie de l'écoulement sur le champ de température.

5.4.3 Etude des émissions de monoxyde d'azote

Avec le modèle NOMANI, il est possible de calculer la contribution de NO produite dans le front de flamme et la proportion de NO produit dans les gaz brûlés. Le ratio de ces deux quantités est appelé γ , et est défini par l'équation 5.6. Dans le cadre de ces travaux nous avons choisi de discriminer la région du front de flamme et de celle des gaz brûlés par la variable de progrès normalisée. C'est ainsi que la figure 5.21, qui représente un champ instantané de cette variable, nous permet d'apprécier les régions composées de gaz brûlés. Ces régions correspondent à un avancement supérieur à 0.99 et sont donc représentés en rouge sur la figure 5.21. Pour ce qui est de la flamme de Sandia D, pour une hauteur de $80 D$, le rapport γ est égale à 0.265. Ceci signifie que 26.5% du NO est formé dans le front de flamme. Cette valeur élevée justifie les efforts importants qui ont été faits pour modéliser le NO formé à la fois dans le front de flamme et dans les gaz brûlés.

$$\gamma = \frac{\int_V (\bar{\rho} \tilde{\omega}_{NO} | \tilde{c} < 0.99) dV}{\int_V \bar{\rho} \tilde{\omega}_{NO} dV} \quad (5.6)$$

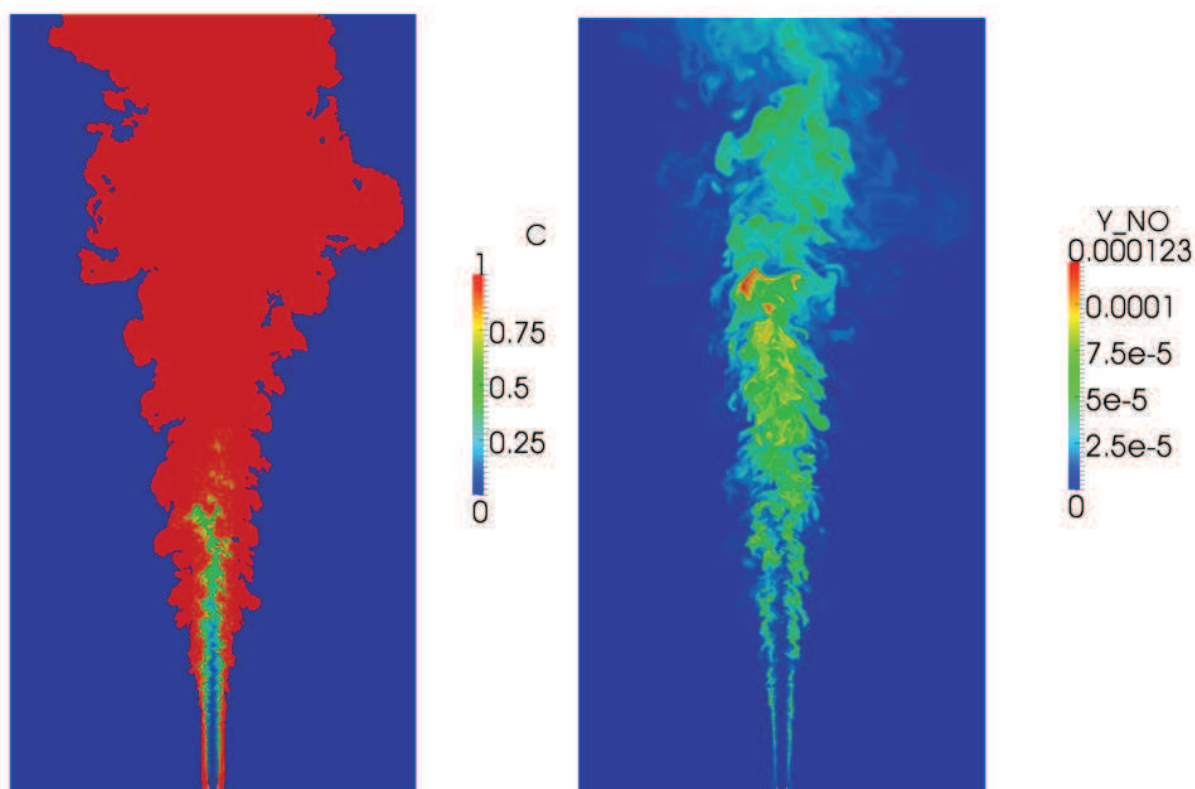


FIGURE 5.21: Champs instantanés de la variable de progrès normalisée (gauche) et de la fraction massique de monoxyde d'azote (droite), calculés avec le maillage M2 et à nombres de Lewis unitaires.

5.5 Conclusion

Le but de ce chapitre était la validation du modèle NOMANI dans un contexte turbulent. La configuration académique choisie pour cela est la flamme de Sandia D. Notre choix s'est porté sur cette configuration en raison des nombreuses mesures disponibles. Il a ainsi été possible de comparer le taux de NO formé à partir de la base du brûleur jusqu'aux gaz brûlés. Les calculs présentés ont permis de mettre en avant l'influence majeure de deux paramètres : le niveau de raffinement du maillage et le modèle de transport choisi pour la tabulation *a priori* de la chimie. Les résultats montrent que le niveau de résolution du maillage influence la formation de structures aérodynamiques qui pilotent le mélange. Les meilleurs résultats ont été observés à partir des calculs effectués sur le maillage le plus raffiné et avec le modèle de transport à nombres de Lewis unitaires. L'emploi d'un maillage très raffiné permet de résoudre correctement le mélange qui est le siège du coeur du jet. Ceci est indispensable pour capturer correctement la bonne longueur de flamme. L'emploi d'un modèle de transport simplifié trouve du sens si l'on s'intéresse aux coefficients de diffusion de la variable de progrès et de la fraction massique. En effet, avec ce modèle il y a une cohérence totale pour ces coefficients entre les calculs effectués lors de la tabulation de la chimie et ceux effectués dans le formalisme LES.

La comparaison entre les calculs numériques et les mesures expérimentales montrent le très bon comportement du modèle NOMANI. Et, à condition que le mélange ainsi que la longueur de flamme soient correctement capturés, le modèle offre des niveaux de NO qualitatifs et quantitatifs. La légère sur prédiction du modèle NOMANI est attribuée à la non prise en compte des pertes enthalpiques. Nous pouvons tout de même noter que cette sur prédiction est plus accentuée dans les régions proches injecteur, où le NO est essentiellement produit dans le front de flamme.

Chapitre 6

Industrialisation du modèle

Chapitre 7

Conclusion

Sommaire

7.1 Conclusion et perspective	126
7.2 Perspectives	127

7.1 Conclusion et perspective

L'objectif initial de cette thèse est le développement et la validation d'un modèle de prédiction des NO_x adapté aux configurations aéronautiques. La particularité des chambres de combustion aéronautiques est la dilution importante des gaz brûlés par l'air qui se fait sur des temps caractéristiques inférieurs au temps de formation des oxydes d'azote. C'est à ce titre que nous nous sommes intéressés aux méthodes dite de chimie détaillée tabulée, qui présentent l'avantage de rendre compte d'effets de cinétique non-infiniment rapide pour un coût CPU modeste. Le chapitre 4 présente les résultats d'une étude de la chimie azotée. Cette étude met en avant l'existence d'un attracteur 1D dans les gaz brûlés qui évolue essentiellement dans la direction du NO. Sous l'hypothèse que la dilution des gaz brûlés se fait sur un temps caractéristique plus important que la relaxation du système chimique sur l'attracteur 1D, il est donc possible de suivre l'évolution du NO en tabulant des réponses de flamme sans dilution dans l'espace des phases (Z , Y_{NO} , $\dot{\omega}_{\text{NO}}$). Ce procédé peut être utilisé pour calculer la production ou la destruction des espèces évoluant selon l'attracteur 1D, mais n'est pas valable pour les espèces dont l'évolution est rapide. Ainsi la tabulation de cet attracteur permet de connaître l'évolution du NO mais n'est pas adaptée au suivi d'une espèce à l'évolution rapide telle le NH. Cette étude met en avant la méthode de tabulation développé pour calculer l'évolution du NO dans les gaz brûlés. Le calcul du NO dans le front de flamme est effectué de façon conventionnelle, avec variable d'avancement basée sur les espèces majoritaires et Z . C'est selon toute vraisemblance le point faible du modèle, puisque le front de flamme modélisé est supposé être celui d'une flamme laminaire. Le suivi du NO formé dans les gaz brûlés est lui assuré avec une seconde variable de progrès. Les travaux réalisés montrent que la fraction massique de NO est appropriée pour jouer le rôle de cette variable de progrès. Le modèle baptisé NOMANI, et qui consiste dans le suivi de la cinétique chimique avec deux variables de progrès, est ensuite validé par des calculs comparatifs avec des flammes 1D stationnaires calculées avec une cinétique chimique complexe. Le chapitre 4 présente également

une étude brève qui débouche sur une écriture du modèle dans le formalisme LES. La validation du modèle dans un contexte LES est présentée dans le chapitre 5. Ce chapitre présente une étude paramétrique mettant en avant l'importance de la modélisation des termes de diffusion lors des calculs préliminaires nécessaires à la tabulation de la chimie. Les résultats présentés illustrent également l'importance que revête la résolution du maillage pour un calcul LES. Le chapitre 6 est consacré à l'établissement d'un modèle de NO_x couplé au modèle de combustion TF-LES. Les résultats donnés par le modèle sont très encourageants mais des études complémentaires sont nécessaires pour valider l'approche proposée. Les résultats présentés identifient le NO_2 comme étant une espèce rapide. Ce résultat suggère que ce soit la fraction massique de NO_2 qui soit extraite de la table FPI plutôt que le terme source de la fraction massique.

7.2 Perspectives

A ce stade de l'étude, plusieurs voies d'améliorations du modèle peuvent être envisagées. Les perspectives de développement potentiels sont les suivantes :

- étudier l'influence des pertes enthalpiques :
La sensibilité à la température des mécanismes réactionnels menant à la formation des oxydes d'azote est un fait bien connu par la communauté scientifique. Différents auteurs [9, 56, 146] ont intégré les phénomènes radiatifs dans les modèles utilisés et ont constaté des niveaux de NO_x moindres. Les travaux de Fiorina [40] suggèrent d'inclure l'enthalpie comme paramètre de tabulation afin de prendre en compte les pertes enthalpiques. Des calculs (non présentés dans cette thèse) concordent avec cette analyse. Ainsi, l'attracteur 1D mis en évidence dans l'espace des fractions massiques est valable dans la dimension de l'enthalpie. Les perturbations dans la direction de l'enthalpie peuvent donc être prises en compte de la même façon qu'une perturbation dans la direction de Z .
- étudier le couplage du modèle avec un écoulement diphasique :
Un tel couplage nécessite d'adapter les équations de la fraction de mélange ainsi que sa variance avec les sources liés à l'évaporation des gouttelettes de carburant. Un effort de modélisation doit également être fait pour estimer l'enthalpie des gaz en considérant la chaleur latente de vaporisation. Une étude des régimes de combustion diphasique est nécessaire pour déterminer si la tabulation de flammes monophasiques est suffisante pour capturer la bonne dynamique de flamme.
- étudier l'influence des effets de diffusion différentielle :
Compte tenu des puissances de calculs disponibles à la date de rédaction de ce manuscrit, il n'est pas possible d'effectuer un calcul de flamme turbulente avec une cinétique chimique complexe. Dans ce contexte, les calculs avec une cinétique chimique complexe ne sont permis que pour des systèmes stationnaires ou 0D. Dès lors, le seul moyen de prendre en compte ces effets est de tabuler la chimie en fonction d'une variable de progrès. Les effets de cinétique pris en compte sont ceux qui sont considérés durant le calcul *a priori* de la chimie. Aussi, les effets de diffusion différentielle dans la direction de Z ne

peuvent être pris en compte lors de la tabulation de flammes 1D stationnaires. Seuls ceux dans la direction de la variable de progrès sont considérés. Il est probable que la prise en compte de ces régimes partiellement pré-mélangés améliorerait les résultats obtenus en matière d'émissions polluantes. Dans cette optique, nous pouvons citer entre autres les travaux de van Oijen [126], de Nguyen *et al.* [99] ou encore de Franzelli *et al.* [43] qui proposent des approches pour améliorer la prise en compte de phénomènes diffusifs. D'autres études [22, 88, 82] ont une approche différente et consistent dans l'étude d'un système chimique soumis à des flux de dilutions. Toutes ces études concluent sur la nécessité de multiplier les variables de progrès pour prendre en compte les effets diffusifs lorsqu'il deviennent important. Ces travaux suggèrent donc que le suivi de la chimie carbonée avec une unique variable de progrès n'est pas satisfaisant lorsque les flux diffusifs deviennent importants. Une étude approfondie sur l'impact des flux diffusifs ainsi sur le système chimique et plus particulièrement les émissions d'oxydes d'azote serait intéressante dans l'optique d'améliorer le modèle NOMANI.

- Méthode d'optimisation des tables chimiques :

Les tables chimiques peuvent représenter un coût conséquent en terme de mémoire, surtout lorsque les tables sont utilisées sous un format texte. Aussi, les tables chimiques utilisées pour les calculs du chapitre 6 ont été limitées en précision. Outre les méthodes de réseau de neurone [59] ou de similarité d'échelle [109], il est possible d'imaginer de nouvelles méthodes permettant la diminution de la quantité d'information devant être tabulée. L'annexe A présente une étude qui débouche sur une écriture du terme source polynomiale du NO. Cette méthode s'apparente à une méthode de repro-modeling dont l'ordre du polynôme est défini d'après des observations faites sur la physique du problème. D'après ces calculs, un polynôme d'ordre trois est adapté à la description de l'évolution de la chimie azotée dans les gaz brûlés. Cette méthode est équivalente à une description de l'avancement de la cinétique chimique avec trois points. Ce qui est très inférieur au maillage généralement utilisé dans la direction de la variable de progrès.

Annexe A

Optimisation de la table chimique

Comme nous l'avons vu précédemment, le format des tables lues par AVBP est le format texte et ce dernier est très coûteux en terme de mémoire. C'est la raison pour laquelle les tables chimiques utilisées pour effectuer les différents calculs présentés dans ce chapitre étaient limitées en terme de précision. Une solution pour diminuer la taille de la table est de changer son format. Dans cette sous-section nous proposons une seconde méthode originale pour diminuer la taille des tables tout en conservant la précision initiale. Cette approche consiste à fitter les réponses de flamme tabulée avec une fonction adaptée à la cinétique chimique.

Cette méthode s'appuie sur une étude de la chimie azotée à travers l'analyse des chemins réactionnels selon la méthode exposée dans la sous-section 3.2.1.1. La figure A.1 représente l'évolution de Y_{NO} en fonction du temps pour un PSR à 10 bar et une température des gaz frais de 850 K. Sur cette figure, trois droites marquent les temps associés aux trois avancement c^+ , qui est défini précédemment par la relation 4.41. Ces trois avancements sont : 1.2, 1.5 et 1.8. Ils ont été choisis de façon à échantillonner les gaz brûlés.

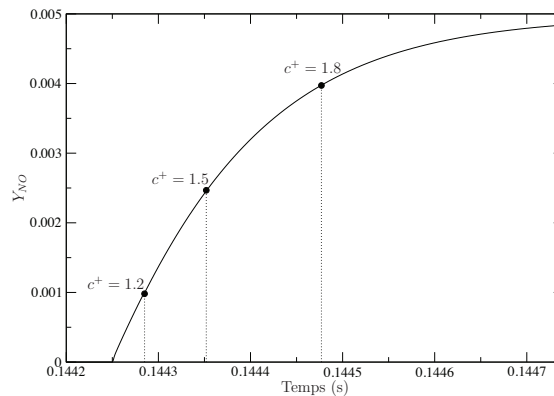


FIGURE A.1: Evolution de Y_{NO} en fonction du temps pour un PSR à 10 bar et une température des gaz frais de 850 K. Trois droites représentent des marqueurs

L'étude des chemins réactionnels aux trois avancements cités précédemment révèle l'uniformité de ces derniers. En effet, à une richesse donnée les chemins réactionnels restent inchangés durant l'évolution de la chimie des gaz brûlés. Ces résultats sont illustrés par la figure A.2, les flux atomiques sont ici normalisés par le facteur "Scale" pour plus de visibilité. Outre cette constance du mécanisme réactionnel, les observations qui ont pu être faites sont en

accord avec les travaux de Hill et Smoot [53] à savoir que la formation de NO produite par le mécanisme de Zel'dovich augmente avec la température tandis que la formation de NNH et N₂O diminue. Il est également à noter que lorsque la richesse augmente cette tendance s'inverse et le mécanisme de Zel'Dovich perd en importance vis-à-vis des mécanismes faisant intervenir le NNH et N₂O.

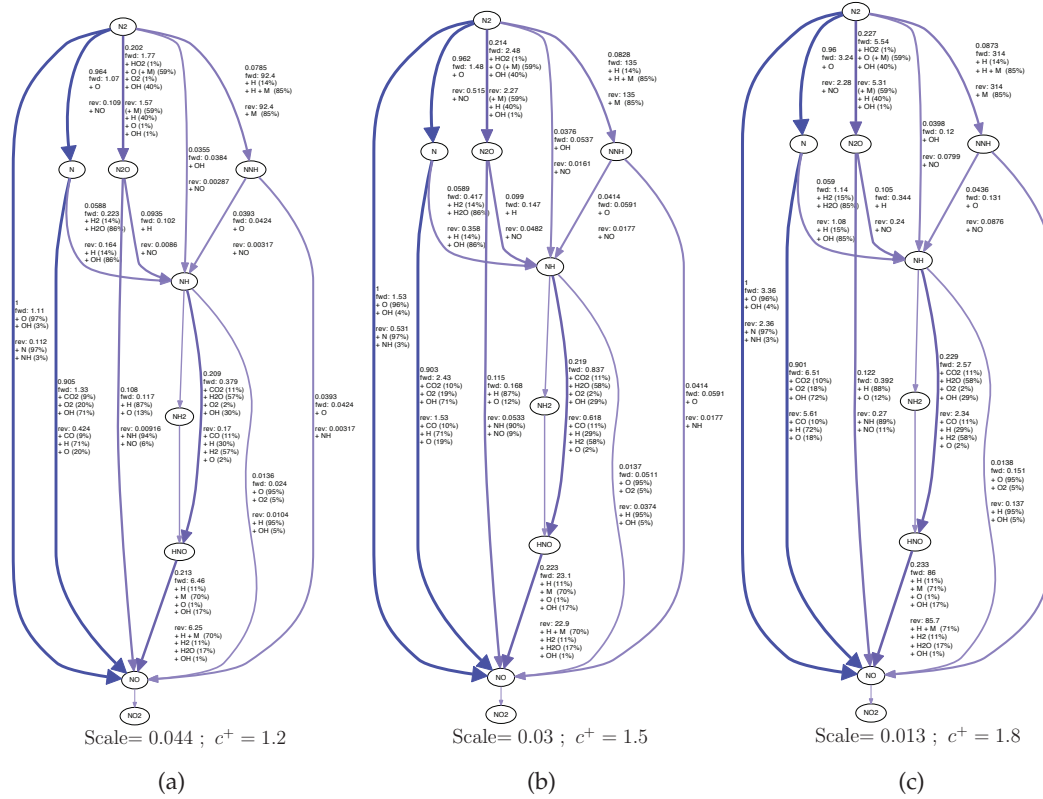


FIGURE A.2: Illustrations des chemins réactionnels à trois avancements. a) $c^+ = 1.2$. a) $c^+ = 1.5$. c) $c^+ = 1.8$.

La forte non-linéarité du système rend le calcul des termes sources de chaque espèce impossible indépendamment les uns des autres. Cependant en tirant avantage de la monotonie des chemins réactionnels, il est possible de simplifier l'écriture du terme source du NO. En effet, si les flux atomiques inter-espèces sont constants en proportion. Ceci signifie qu'il existe une relation linéaire entre toutes les fractions molaires soit

$$X_k = \alpha'_k(Z) \times X_{NO} + \beta'_k(Z) . \quad (\text{A.1})$$

Sous l'hypothèse que dans les gaz brûlés d'une flamme isobar la température et la densité sont constantes [11], alors la masse molaire est constante (d'après l'équation 2.10). La constance de la masse molaire et la relation A.8 nous permettent d'écrire la relation

$$Y_k = \alpha_k(Z) \times Y_{NO} + \beta_k(Z) . \quad (\text{A.2})$$

De plus, sous l'hypothèse que la température est constante dans les gaz brûlés, les constantes

de vitesse décrites initialement par les relations 2.58 et 2.65 deviennent

$$K_{fj} = f_{fj}(Z) \quad (\text{A.3})$$

et

$$K_{rj} = f_{rj}(Z) . \quad (\text{A.4})$$

En injectant les relations A.2, A.3 et A.4 dans l'expression de l'avancement de la $j^{\text{ème}}$ réaction

$$Q_j = f_{fi}(Z) \prod_{k=1}^N \left(\frac{\varphi Y_k}{W_k} \right)^{\nu'_{kj}} - f_{ri}(Z) \prod_{k=1}^N \left(\frac{\varphi Y_k}{W_k} \right)^{\nu''_{kj}} \quad (\text{A.5})$$

on obtient alors une nouvelle formulation

$$Q_j = f_{fi}(Z) \prod_{k=1}^N \left(\alpha_k(Z) \times Y_{NO} + \beta_k(Z) \right)^{\nu'_{kj}} - f_{ri}(Z) \prod_{k=1}^N \left(\alpha_k(Z) \times Y_{NO} + \beta_k(Z) \right)^{\nu''_{kj}} . \quad (\text{A.6})$$

En faisant l'hypothèse que la cinétique des gaz brûlés ne fait intervenir que des réactions avec deux espèces il est alors possible d'écrire

$$f_j(Z) \prod_{k=1}^N \left(\alpha_k(Z) \times Y_{NO} + \beta_k(Z) \right)^{\nu'_{kj}} = f_{2,j}(Z) \times Y_{NO}^2 + f_{1,j}(Z) \times Y_{NO} + f_{0,j}(Z) \quad (\text{A.7})$$

Finalement, en injectant l'expression précédente dans l'expression du terme source d'une espèce chimique (équation 2.55), il est possible de déduire une nouvelle expression du terme source chimique de la fraction massique de NO :

$$\dot{\omega}_{NO} = A(Z) \times Y_{NO}^2 + B(Z) \times Y_{NO} + C(Z) . \quad (\text{A.8})$$

Cette expression du terme source du monoxyde d'azote a été validée par le calcul de flammes 1D stationnaires. L'expression du terme source précédemment développée est ici validée sur une flamme méthane/air à un atmosphère et 300 K. Les trois coefficients A , B et C sont déterminés à partir d'un calcul avec cinétique chimique complexe. L'expression est validée en négligeant les termes diffusifs, l'équation résolue est donc

$$\frac{\partial \varphi u Y_{NO}}{\partial x} = \dot{\omega}_{NO} , \quad (\text{A.9})$$

dans la région des gaz brûlés. Les conditions limites associées sont les suivantes :

$$x_0 = x(c = 0.99) \quad (\text{A.10})$$

et

$$x_{NO}(x_0) = Y_{NO}(c = 0.99) . \quad (\text{A.11})$$

L'équation est résolue sur un maillage régulier avec une taille de maille égale à 10^{-2} m et une méthode du second ordre pour l'évaluation du terme source. Cette solution est comparée à

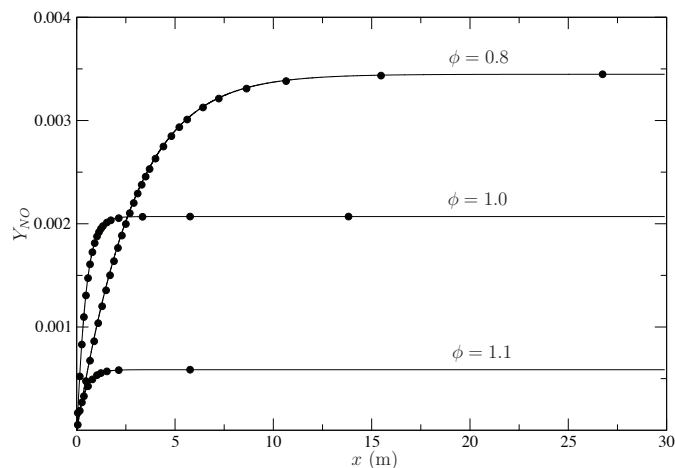


FIGURE A.3: Evolution spatiale de la fraction massique de monoxyde d'azote dans les gaz brûlés . Symbole : cinétique chimique complexe. Ligne : Description polynomiale du terme source

la solution avec cinétique chimique complexe. Les résultats sont illustrés sur la figure A.3 et l'erreur relative est inférieure à 0.4%.

Ces résultats confirment l'évolution particulière du NO dans les gaz brûlés. La tabulation du terme source $\dot{\omega}_{NO}$ dans les gaz brûlés peut donc être remplacée par la tabulation de trois paramètres (A , B et C) uniquement fonction de Z et non fonction de Y_{NO} et Z . Il est également possible de comparer ces résultats avec l'analyse faite par Vervisch *et al.* [67, 132]. Puisque les auteurs se placent dans le contexte où toutes les espèces à l'exception du monoxyde d'azote, l'expression de $\dot{\omega}_{NO}$ est un polynôme du premier ordre (voir équation 4.26). La formulation que nous mettons en avant dans ces travaux tient compte des espèces qui évoluent linéairement avec NO, tel le NH par exemple. C'est la raison pour laquelle nous obtenons un polynôme du deuxième degré.

Table des figures

1.1	Représentation du trafic aérien instantané en 2012 (source IATA).	14
1.2	Evolution au cours du temps des émissions de CO ₂ liées au carbone fossile (source CDIAC).	15
1.3	Multiperforation pariétales sur viroles internes et externes.	16
1.4	Exemples de systèmes de refroidissement. a) Refroidissement par impact et film. b) Refroidissement par film.	17
1.5	Evolution de la température moyenne pour un calcul de chambre de combustion (Turbomeca). Ces calculs ont été effectués par G. Boudier [15].	17
2.1	Illustration schématique de la trajectoire d'une particule k de diamètre σ_k obéissant à l'hypothèse du gaz parfait.	26
2.2	Illustration schématique de la cascade turbulente de Kolmogorov, où $E(k)$ l'énergie associée à la longueur d'onde k	32
2.3	Représentations schématiques des trois méthodes de résolution des équations de Navier-Stokes, illustration tirée du manuscrit de thèse de A.Roux [112].	34
2.4	Représentation spectrale des échelles résolues et modélisées en LES.	36
3.1	Représentations schématiques de la structure d'une flamme pré-mélangée stationnaire monodimensionnelle [134].	41
3.2	Représentations schématiques de la structure d'une flamme de diffusion stationnaire monodimensionnelle [134].	43
3.3	Diagramme de régimes de flamme de pré-mélange, basé sur les travaux de Peters [104].	46
3.4	Schéma de synthèse d'un diagramme de flux atomique entre les espèces k et k'	48
3.5	Classification des temps caractéristiques d'un écoulement réactif [139].	51
3.6	a) Evolutions de différentes compositions dans l'espace des phases [111], les coordonnées sont exprimées en fractions massiques pondérées : $\Phi_i = Y_i/W_i$. Ces compositions partagent toutes le même équilibre thermodynamique noté par un rond blanc. b) Evolutions des compositions représentées pour $t > 50 \mu s$. c) Evolutions des compositions représentées pour $t > 5 ms$	53
3.7	Comparaison des réponses de flamme obtenue avec FPI (cercles noir), ILDM (carré vide) et une flamme de pré-mélange turbulente CO/H ₂ /air (points noir). Illustration tirée des travaux de Gicquel <i>et al.</i> [47].	55

3.8	Projection d'une flamme stœchiométrique propane/air dans l'espace physique et dans l'espace des phases ($Y_c = Y_{CO}$). Illustration tirée de la thèse de Vicquelin [135].	56
4.1	Evolution de Y_{NO} en fonction de la variable de progrès : $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2} + Y_{H_2O}$, pour différentes richesses.	65
4.2	Représentation du NO produit dans le front de flamme ($Y_{NO}(c = 0.99)$) et du NO à l'équilibre thermodynamique, pour une flamme méthane/air à pression atmosphérique. a) Valeurs non-normalisées. b) Les quantités sont normalisées par leurs valeurs maximales.	66
4.3	Surface $Y_{NO} = f(S_Z, S_c)$ pour $\tilde{c} = 0.87$ et $\tilde{Z} = Z_{st}$, illustration extraite de la thèse de Godel [50].	69
4.4	Représentation schématique du problème canonique.	73
4.5	Evolution de la composition des cinq PSR dans l'espace des phases ($Y_{NO}, Z, \dot{\omega}_{NO}$). Trait rouge : trajectoire du PSR à fraction de mélange constante et égale à 0.035. Tiret noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.04$. Tiret point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.045$. Tiret point point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.05$. Points noirs : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.055$	74
4.6	Représentations 2D des résultats de la figure 4.5. a) Coupe dans le plan défini par $Z = Z_{min}$. b) Projection dans le plan (Z, Y_{NO}).	75
4.7	Evolution de la composition des cinq PSR dans l'espace des phases ($Y_{NH}, Z, \dot{\omega}_{NH}$). Trait rouge : trajectoire du PSR avec une fraction de mélange constante et égale à 0.045. Tiret noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.05$. Tiret point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.055$. Tiret point point noir : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.06$. Points noirs : trajectoire du PSR dilué avec $Z_{init} = 0.065$. a) vue globale. b) zoom sur l'évolution du PSR non dilué.	77
4.8	Représentations 2D des résultats de la figure 4.5. a) Coupe dans le plan défini par $Z = Z_{min}$. b) Coupe dans le plan défini par $Z = Z_{min}$ avec les trajectoires des compositions conditionnées par un temps $dt > 10^{-6}$ s.	78
4.9	Evolution des compositions calculées avec le PSR représentée dans l'espace des phases ($Y_{NO}, Z, \dot{\omega}_{NO}$). Les PSR sont calculés avec la même fraction de mélange initiale et finale mais avec des de dilution différents. Le temps de dilution est incrémenté de 1 s à partir de 1 s jusqu'à 20 s et est incrémenté de 5 s entre 20 s et 50 s. Lignes noir : mélanges dilués. Lignes rouge : mélanges à fraction de mélange fixe. Tirets noir : conditions correspondant à l'équilibre thermodynamique.	78
4.10	a) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.04$. b) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.05$. Points noirs : valeurs obtenues à partir de PSR dilués. Lignes rouges : trajectoire obtenue par un PSR à fraction de mélange constante.	79
4.11	Evolution des compositions calculées avec le PSR représentée dans l'espace des phases ($Y_{NH}, Z, \dot{\omega}_{NH}$). Les PSR sont calculés avec la même fraction de mélange initiale et finale mais avec des temps de dilution différents. Le temps de dilution est incrémenté de 1 s à partir de 1 s jusqu'à 20 s et est incrémenté de 5 s entre 20 s et 50 s. Lignes noires : mélanges dilués. Lignes rouges : mélanges à fraction de mélange fixe. Tirets noirs : conditions correspondant à l'équilibre thermodynamique.	80

4.12	a) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.04$. b) Coupe de la figure 4.9 dans le plan $Z = 0.05$. Points noirs : valeurs obtenues à partir de PSR dilués. Ligne rouge : trajectoire obtenue par un PSR à fraction de mélange constante.	81
4.13	Evolution de la variable de progrès normalisée c en fonction c^+ pour deux PSR. Trait noir : conditions référencées dans le tableau 4.2 et $Z = 0.055$ à 10 bar . Tiret rouge : conditions référencées dans le tableau 4.3 et $Z = 0.062$ à 10 bar	84
4.14	Evolution de n_{mani} en fonction c^+ pour deux PSR. a) Conditions référencées dans le tableau 4.2 et $Z = 0.055$ à 10 bar . b) Conditions référencées dans le tableau 4.3 et $Z = 0.062$ à 10 bar	84
4.15	Représentation schématique du problème canonique.	86
4.16	Evolutions du NO obtenues par le calcul d'une flamme 1D et d'un PSR avec perte enthalpique pour : $P = 1 \text{ atm}$ et $T = 294 \text{ K}$	87
4.17	Evolution de τ_{dil}^{min} en fonction de la pression. a) Chimie méthane/air. b) Chimie kérosène air.	87
4.18	Evolution des compositions calculées avec le PSR représentée dans l'espace des phases (Y_{NO} , Z , $\dot{\omega}_{NO_2}$). Les PSR sont calculés avec la même fraction de mélange initiale et finale mais avec des taux de dilution différents. Le taux de dilution est incrémenté de 1 s^{-1} à partir de 1 s^{-1} jusqu'à 20 s^{-1} et est incrémenté de 5 s^{-1} entre 20 s^{-1} et 50 s^{-1} . Lignes noirs : mélanges dilués. Lignes rouges : mélanges à fraction de mélange fixe.	89
4.19	Compositions chimiques de différents réacteurs homogènes d'un mélange stoechiométrique méthane/air avec des quantités initiales de NO différentes. Les compositions sont projetées dans l'espace ($CO_2/H_2O/NO$). Les concentrations sont exprimées en mol.kg^{-1} . Illustration extraite des travaux de Nafe et Maas [96].	91
4.20	Evolution des termes sources chimiques à différentes richesses d'une flamme 1D. Différents symboles sont utilisés pour représenter la variation en richesse ϕ . Lignes : dY_{NO}/dY_c . Points : $d\dot{\omega}_{NO}/dY_{NO}$	92
4.21	Evolution spatiale de $Y_{NO}(Z, Y_c)$ pour une flamme 1D à différentes richesses. Symboles : chimie détaillée. Lignes : solver CFD associé au modèle NOMANI.	94
4.22	Evolution du terme source chimique pour une flamme 1D pour différentes richesses. Les symboles spécifient la richesse : ϕ . Lignes : $\dot{\omega}_{Y_c}$. Points : $\dot{\omega}_{Y_{NO}}$	95
4.23	Représentations des deux fonctions : a) $\xi_1(\Delta, \epsilon)$ et b) $\xi_2(\Delta, \epsilon)$	96
4.24	Réponse de flamme filtrée à 20 tailles de filtres par pas de $80 \mu\text{m}$. Tirets : réponse de flamme non-filtrée. Lignes : réponses de flamme filtrées. a) Représentation de \tilde{c} en fonction de l'espace. b) Représentation de Sc en fonction de \tilde{c}	97
4.25	Réponse de flamme filtrée à 20 tailles de filtres par pas de $80 \mu\text{m}$. Tirets : réponse de flamme non-filtrée. Lignes : réponses de flamme filtrées. Points : $Y_{NO}^+ = 1$. a) et b) Représentation des réponses de flamme dans l'espace physique. c) et d) Représentation des réponses de flamme dans l'espace Y_{NO}^+	98
5.1	Photographie de la flamme dite de Sandia D [2]	101
5.2	a) Champ instantané de la température. b) Champ de la vitesse moyenne.	103

5.3	Vitesse moyenne et RMS dans le plan de sortie de l'injecteur. Vert : profil imposé sur la condition d'entrée et correspondant à l'équation 5.1. Rouge : profil calculé avec la condition mur non-glissant. Noir : profil calculé avec la condition mur glissant.	103
5.4	Visualisation du maillage M1.	104
5.5	Comparaison des vitesses de flammes S_L pour les conditions thermodynamiques de la flamme de Sandia D : Lewis variables (trait noir) et Lewis unitaires (trait rouge).	105
5.6	Evolution de Z calculé selon la formulation de Bilger (équation 3.16) à travers une flamme 1D méthane/air à pression atmosphérique pour trois richesses.	106
5.7	Evolution de la température, de $\dot{\omega}_{Y_c}$ et de $\dot{\omega}_{NO}$ représentés dans l'espace (Z, Y_c) , obtenus avec les nombres de Lewis variables (gauche) et nombres de Lewis unitaires (droite). a) et b) Iso-contours tous les 220 K. c) Iso-contours tous les 230 s ⁻¹ . d) Iso-contours tous les 190 s ⁻¹ . e) Iso-contours tous les 0.023 s ⁻¹ . f) Iso-contours tous les 0.017 s ⁻¹	108
5.8	Rapport entre le viscosité dynamique turbulente et la viscosité dynamique laminaire. a) Maillage M1. b) Maillage M2. Le modèle de transport considère les nombres de Lewis unitaires.	109
5.9	Comparaison des niveaux de fraction de mélange moyenne et de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.	110
5.10	Comparaison des niveaux température moyenne et de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.	111
5.11	Comparaison des niveaux de vitesse axiale de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.	112
5.12	Comparaison des niveaux de fraction massique de monoxyde d'azote moyenne et de ses fluctuations. Tirets : maillage M1. Ligne : maillage M2. Noir : nombres de Lewis unitaires. Rouge : nombres de Lewis variables. Symboles : valeurs expérimentales.	113
5.13	Champs moyens de la fraction de mélange (gauche), de la fraction massique de NO (milieu) et de la température (droite). Ces champs instantanés correspondent au cas de calcul 4 référencé dans le tableau 5.4.	115
5.14	Comparaison des niveaux de température moyenne et de ses fluctuations. Les calculs ont été effectués sur le maillage M1 et le modèle aux nombres de Lewis unitaires. Tirets noirs : GRI-Mech 3.0. Tirets bleus : GRI-Mech 2.11. Symboles : valeurs expérimentales.	115
5.15	Comparaison des niveaux de la fraction massique de monoxyde d'azote moyenne et de ses fluctuations. Les calculs ont été effectués avec le maillage M1 et à Lewis unitaires. Tirets noirs : GRI-Mech 3.0. Tirets bleus : GRI-Mech 2.11. Symboles : valeurs expérimentales.	116
5.16	Champs instantanés de la température (gauche) et de la fraction massique de monoxyde d'azote (droite), ces champs correspondent au cas n°4.	118

5.17	Scatter plot de la température en fonction de la fraction de mélange pour $x = 7.5D$ (gauche) et pour $x = 30D$ (droite). Noir : mesures expérimentales, rouge : simulation sur le maillage M2 et le modèle de transport à nombres de Lewis unitaires. 3000 valeurs expérimentales et numériques sont représentées.	118
5.18	Champs moyen \tilde{Z} . Un iso-contour de la fraction de mélange égale à 0.6 est représenté par une ligne noire et la ligne blanche représente la hauteur $H = 32 D$	119
5.19	Champs instantanés conditionnés par $\tilde{\omega}_{Y_c} > 0.01$, colorés par \tilde{c} (gauche), l'indice de Takeno (milieu) et \tilde{Z} (droite). Un iso-contour de la fraction de mélange égale à 0.6 est représenté par une ligne rouge (milieu).	120
5.20	Illustration de la dissymétrie de l'écoulement sur le champ de température.	120
5.21	Champs instantanés de la variable de progrès normalisée (gauche) et de la fraction massique de monoxyde d'azote (droite), calculés avec le maillage M2 et à nombres de Lewis unitaires.	121
A.1	Evolution de Y_{NO} en fonction du temps pour un PSR à 10 bar et une température des gaz frais de 850 K. Trois droites représentent des marqueurs	130
A.2	Illustrations des chemins réactionnels à trois avancements. a) $c^+ = 1.2$. a) $c^+ = 1.5$. c) $c^+ = 1.8$	131
A.3	Evolution spatiale de la fraction massique de monoxyde d'azote dans les gaz brûlés . Symbole : cinétique chimique complexe. Ligne : Description polynomiale du terme source	133

Liste des tableaux

4.1	Composition modèle du kérosène selon Luche [80], en pourcentages molaires . .	64
4.2	Compositions du fuel et de l'oxydant pour les calculs méthane/air, T_0 est la température initiale.	72
4.3	Compositions du fuel et de l'oxydant pour les calculs kérosène/air, T_0 est la température initiale.	83
4.4	Conditions thermodynamiques utilisées pour calculer τ_{dil}^{min}	86
5.1	Propriétés thermodynamiques de la condition fuel et de la condition oxydant utilisées pour confectionner la table FPI.	101
5.2	Conditions limites de la flamme de Sandia D.	101
5.3	Paramètres des maillages M1 et M2.	104
5.4	Différents cas de calcul.	109

Bibliographie

- [1] Carbon Dioxide Information Analysis Center (CDIAC). <http://cdiac.ornl.gov/>.
- [2] Sandia : Experimental data archives. <http://www.sandia.gov/TNF/pilotedjet.html>.
- [3] C. Angelberger, D. Veynante, F. Egolfopoulos, and T. Poinso. Large eddy simulations of combustion instabilities in pre-mixed flames. In *Summer Program*, pages 61–82. Center for Turbulence Research, NASA Ames/Stanford Univ., 1998.
- [4] A. El bakali, L. Pillier, P. Desgroux, B. Lefort, L. Gasnot, J.F. Pauwels, and I. da Costa. NO prediction in natural gas flames using GDF-Kin@3.0 mechanism NCN and HCN contribution to prompt-NO formation. *Fuel*, 85(7–8) :896 – 909, 2006.
- [5] R. S. Barlow and J. H. Frank. Effects of turbulence on species mass fractions in methane/air jet flames. *Symposium (International) on Combustion*, 27 :1087–1095, 1998.
- [6] R. S. Barlow, J. H. Frank, A. N. Karpetis, and J.-Y. Chen. Piloted methane/air jet flames : Transport effects and aspects of scalar structure. *Combust. Flame*, 143 :433–449, 2005.
- [7] R. S. Barlow and A. N. Karpetis. Measurements of scalar variance, scalar dissipation, and length scales in turbulent piloted methane/air jet flames. *Flow, Turb. Combust.*, 72 :427–448, 2004.
- [8] R. S. Barlow and A. N. Karpetis. Scalar length scales and spatial averaging effects in turbulent piloted methane/air jet flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(1) :673 – 680, 2005.
- [9] R. S. Barlow, A. Smith, J.-Y. Chen, and R. W. Bilger. Nitric Oxide formation in dilute hydrogen jet flames : Isolation of the effects of radiation and turbulence-chemistry submodels. *Combust. Flame*, 117 :4–31, 1999.
- [10] W. Bartok, V.S. Engleman, R. Goldstein, and E.G. Del Valle. Basic kinetic studies and modeling of nitrogen oxide formation in combustion processes. *AIChE Symposium Series*, 68(126) :30–38, 1972.
- [11] F. Biagioli and F. Güthe. Effect of pressure and fuel–air unmixedness on NO_x emissions from industrial gas turbine burners. *Combustion and Flame*, 151(1–2) :274 – 288, 2007.
- [12] R.B. Bird, W.E. Stewart, and E.N. Lightfoot. Transport phenomena. 2002. *JohnWiley & Sons, New York*.
- [13] H. Bockhorn, C. Chevalier, J. Warnatz, and V. Weyrauch. Experimental investigation and modeling of prompt-NO in hydrocarbon flames. *Heat Transfer in Fire and Combustion Systems (American Society of Mechanical Engineers, New York, 1991)*, 166 :11–16, 1991.
- [14] M. Bodenstein and H. Lutkemeyer. Quasi-steady state assumption. *Physics and Chemistry*, 114, 1924.
- [15] G. Boudier, L.Y.M. Gicquel, T. Poinso, D. Bissières, and C. Bérat. Effect of mesh resolution on large eddy simulation of reacting flows in complex geometry combustors. *Combustion and Flame*, 155(1-2) :196–214, 2008.
- [16] J. Boussinesq. Théorie de l'écoulement tourbillant. *Mém. Présentés par Divers Savants. Acad. Sci. Inst. Fr.*, 23 :46–50, 1877.
- [17] C.T. Bowman. Kinetics of pollutant formation and destruction in combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 1(1) :33–45, 1975.
- [18] J.W. Bozzelli and A.M. Dean. O+ NNH : A possible new route for NO_x formation in flames. *International journal of chemical kinetics*, 27(11) :1097–1109, 1995.
- [19] D. Bradley, P.H. Gaskell, X.J. Gu, M. Lawes, and M.J. Scott. Premixed turbulent flame instability and NO formation in a lean-burn swirl burner. *Combustion and Flame*, 115(4) :515–538, 1998.

- [20] D. Bradley, L.K. Kwa, A.K.C. Lau, M. Missaghi, and S.B. Chin. Laminar flamelet modeling of recirculating premixed methane and propane-air combustion. *Combust. Flame*, 71 :109–122, 1988.
- [21] S.P. Burke and T.E.W. Schumann. Diffusion flames. *Industrial and Engineering Chemistry*, 20(10) :998–1005, 1928.
- [22] V. Bykov and U. Maas. The extension of the ILDM concept to reaction–diffusion manifolds. *Combustion Theory and Modelling*, 11(6) :839–862, 2007.
- [23] R. R. Cao and S. B. Pope. The influence of chemical mechanisms on PDF calculations of nonpremixed piloted jet flames. *Combust. Flame*, 143 :450–470, 2005.
- [24] CERFACS. *AVBP Handbook* - http://cerfacs.fr/~avbp/AVBP_V5.X/HANDBOOK. CERFACS, 2009.
- [25] J.Y. Chen. A general procedure for constructing reduced reaction mechanisms with given independent relations. *Combustion Science and Technology*, 57(1-3) :89–94, 1988.
- [26] O. Colin, F. Ducros, D. Veynante, and T. Poinso. A thickened flame model for large eddy simulations of turbulent premixed combustion. *Physics of Fluids*, 12(7) :1843–1863, 2000.
- [27] S.M. Correa. A review of NO_x formation under gas-turbine combustion conditions. *Combustion science and technology*, 87(1-6) :329–362, 1993.
- [28] R. Courant, K. Friedrichs, and H. Lewy. On the partial difference equations of mathematical physics. *IBM Journal of Research and Development*, 11(2) :215–234, 1967.
- [29] C.F. Curtiss and J.O. Hirschfelder. Transport properties of multicomponent gas mixtures. *The Journal of Chemical Physics*, 17 :550, 1949.
- [30] B.B. Dally, D.F. Fletcher, and A.R. Masri. Flow and mixing fields of turbulent bluff-body jets and flames. *Combustion Theory and Modelling*, 2(2) :193–219, 1998.
- [31] M.J. Davis and R.T. Skodje. Geometric investigation of low-dimensional manifolds in systems approaching equilibrium. *The Journal of Chemical Physics*, 111 :859, 1999.
- [32] L.P.H. de Goey, J.A. van Oijen, H. Bongers, and G.R.A. Groot. New flamelet based reduction methods : the bridge between chemical reduction techniques and flamelet methods. In *European Combustion Meeting, Orléans (France)*, 2003.
- [33] G.G. De Soete. Overall reaction rates of NO and N₂ formation from fuel nitrogen. *Symposium (International) on Combustion*, 15(1) :1093–1102, 1975.
- [34] G.G. De Soete. *Kinetics of combustion and combustion related nitrogen chemistry*. Support de cours de Master 2 EFE, CORIA, 1996.
- [35] P. Domingo, L. Vervisch, S. Payet, and R. Hauguel. DNS of a premixed turbulent V-Flame and LES of a ducted flame using a FSD-PDF subgrid scale closure with FPI-tabulated chemistry. *Combustion and Flame*, 143(4) :566–586, 2005.
- [36] P. Domingo, L. Vervisch, and D. Veynante. Large-eddy simulation of a lifted methane jet flame in a vitiated coflow. *Combust. Flame*, 152 :415–432, 2008.
- [37] P. Domingo, L. Vervisch, and D. Veynante. Large-eddy simulation of a lifted methane jet flame in a vitiated coflow. *Combustion and Flame*, 152(3) :415–432, 2008.
- [38] N. Enjalbert. *Modélisation avancée de la combustion turbulente diphasique en régime de forte dilution par les gaz brûlés*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2011.
- [39] C.P. Fenimore and H.A. Fraenkel. *Proceedings of the Combustion Institute*, 18 :143–149, 1981.
- [40] B. Fiorina. *Modélisation de la combustion turbulente pour l'amélioration de la prédiction des polluants dans un brûleur industriel*. PhD thesis, École Centrale Paris, 2004.
- [41] B. Fiorina, O. Gicquel, L. Vervisch, S. Carpentier, and N. Darabiha. Approximating the chemical structure of partially premixed and diffusion counterflow flames using FPI flamelet tabulation. *Combustion and Flame*, 140(3) :147–160, 2005.
- [42] J.H. Frank and R.S. Barlow. Simultaneous rayleigh, raman, and LIF measurements in turbulent premixed methane-air flames. *Symposium (International) on Combustion*, 27(1) :759 – 766, 1998. Twenty-Seventh Symposium (International) on Combustion Volume One.

- [43] B. Franzelli, B. Fiorina, and N. Darabiha. A tabulated chemistry method for spray combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2012.
- [44] S.J. Fraser and M.R. Roussel. Phase-plane geometries in enzyme kinetics. *Canadian journal of chemistry*, 72(3) :800–812, 1994.
- [45] M. Frenklach, H. Wang, M. Goldenberg, G. P. Smith, D. M. Golden, C. T. Bowman, R. K. Hanson, W. C. Gardiner, and V. Lissianki. GRI-mech : an optimized detailed chemical reaction mechanism for methane combustion. Technical Report GRI-Report GRI-95/0058, Gas Research Institute, 1995.
- [46] M. Germano, U. Piomelli, P. Moin, and W. Cabot. A dynamic subgrid-scale eddy viscosity model. *Physics of Fluids*, 3(7) :1760–1765, 1991.
- [47] O. Gicquel, N. Darabiha, and D. Thévenin. Liminar premixed hydrogen/air counterflow flame simulations using flame prolongation of ILDM with differential diffusion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28(2) :1901–1908, 2000.
- [48] O. Gicquel, D. Thevenin, M. Hilka, and N. Darabiha. Direct numerical simulation of turbulent premixed flames using intrinsic low-dimensional manifolds. *Combustion Theory and Modelling*, 3(3) :479–502, 1999.
- [49] P. Glarborg, J.A. Miller, and R.J. Kee. Kinetic modeling and sensitivity analysis of nitrogen oxide formation in well-stirred reactors. *Combustion and Flame*, 65(2) :177–202, 1986.
- [50] G. Godel. *Modélisation de sous-maille de la combustion turbulente : développement d'outils pour la prédiction de la pollution dans une chambre aéronautique*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2010.
- [51] G. Godel, P. Domingo, and L. Vervisch. Tabulation of NO_x chemistry for large-eddy simulation of non-premixed turbulent flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(1) :1555–1561, 2009.
- [52] D.G. Goodwin. An open-source, extensible software suite for CVD process simulation. *Chemical Vapor Deposition XVI and EUROCVI*, 14 :2003–08, 2003.
- [53] S.C. Hill and L. D. Smoot. Modeling of nitrogen oxides formation and destruction in combustion systems. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 26 :417–458, 2000.
- [54] J.O. Hirschfelder, C. F. Curtiss, and R. B. Bird. *Molecular theory of gases and liquids*. John Wiley and Sons, New York, 1969.
- [55] M. Ihme and H. Pitsch. Modeling of radiation and nitric oxide formation in turbulent nonpremixed flames using a flamelet/progress variable formulation. *Physics of Fluids*, 20 :055110, 2008.
- [56] M. Ihme and H. Pitsch. Modeling of radiation and nitric oxide formation in turbulent nonpremixed flames using a flamelet/progress variable formulation. *Phys. Fluids*, 20, 2008.
- [57] M. Ihme and H. Pitsch. Prediction of extinction and reignition in nonpremixed turbulent flames using a flamelet/progress variable model. 1. A priori study and presumed PDF closure. *Combust. Flame*, 155 :70–89, 2008.
- [58] M. Ihme and H. Pitsch. Prediction of extinction and reignition in nonpremixed turbulent flames using a flamelet/progress variable model 2. Application in LES of Sandia flames D and E. *Combust. Flame*, 155 :90–107, 2008.
- [59] M. Ihme, C. Schmitt, and H. Pitsch. Optimal artificial neural networks and tabulation methods for chemistry representation in LES of a bluff-body swirl-stabilized flame. *Proc. Combust. Inst.*, 32 :1527–1535, 2009.
- [60] A.N. Karpets and R.S. Barlow. Measurements of flame orientation and scalar dissipation in turbulent partially premixed methane flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(1) :665 – 672, 2005.
- [61] R. J. Kee, J. Warnatz, and J. A. Miller. A fortran computer code package for the evaluation of gas phase viscosities, conductivities, and diffusion coefficients. Technical Report SAND83-8209, Sandia National Laboratories, 1983.
- [62] K. Kemenov, S. Viswanathan, H. Wang, and S. Pope. Transport by molecular diffusion in LES of a turbulent diffusion flame. *Bulletin of the American Physical Society*, 54, 2009.
- [63] K.A. Kemenov and S.B. Pope. Molecular diffusion effects in LES of a piloted methane–air flame. *Combustion and Flame*, 158(2) :240–254, 2011.
- [64] A. Ketelheun, C. Olbricht, F. Hahn, and J. Janicka. NO prediction in turbulent flames using LES/FGM with additional transport equations. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(2) :2975 – 2982, 2011.
- [65] S.H. Kim and K.Y. Huh. Second-order conditional moment closure modeling of turbulent piloted jet diffusion flames. *Combustion and Flame*, 138(4) :336 – 352, 2004.

- [66] V. Knop, J. Michel, and O. Colin. On the use of a tabulation approach to model auto-ignition during flame propagation in SI engines. *Applied Energy*, 88(12) :4968 – 4979, 2011.
- [67] V. Knop, A. Nicolle, and O. Colin. Modelling and speciation of nitrogen oxides in engines. *Proceedings of the Combustion Institute*, (0) :In Press, Corrected Proof, 2012.
- [68] A.N. Kolmogorov. The local structure of turbulence in incompressible viscous fluid for very large reynolds numbers. *C.R. Acad. Sci. USSR*, 30 :301, 1941.
- [69] A.A. Konnov. Implementation of the NCN pathway of prompt-NO formation in the detailed reaction mechanism. *Combustion and Flame*, 156(11) :2093–2105, 2009.
- [70] A. Kronenburg and M. Kostka. Modeling extinction and reignition in turbulent flames. *Combustion and Flame*, 143(4) :342 – 356, 2005.
- [71] N. Lamoureux, P. Desgroux, A. El Bakali, and J.F. Pauwels. Experimental and numerical study of the role of NCN in prompt-NO formation in low-pressure CH₄-O₂-N₂ and C₂H₂-O₂-N₂ flames. *Combustion and Flame*, 157(10) :1929 – 1941, 2010.
- [72] M. Lange and J. Warnatz. Massively parallel direct numerical simulation of turbulent combustion. In *NIC Symposium*, pages 419–429, 2001.
- [73] C.K. Law. Combustion at a crossroads : Status and prospects. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(1) :1–29, 2007.
- [74] A.H. Lefebvre. *Gas turbine combustion*. CRC, 1999.
- [75] J.P. L egier, T. Poinso, and D. Veynante. Dynamically thickened flame LES model for premixed and non-premixed turbulent combustion. In *In Summer Program*, pages 157–168. Center for Turbulence Research, NASA Ames/Stanford Univ., 2000.
- [76] J.P. L egier, B. Varoqui e, F. Lacas, T. Poinso, and D. Veynante. Large eddy simulation of a non-premixed turbulent burner using a dynamically thickened flame model. In A. Pollard Eds and S. Candel, editors, *IUTAM Symposium on Turbulent Mixing and Combustion*, pages 315 – 326. Kluwer Academic Publishers, 2002.
- [77] M. Lesieur, O. M etais, and P. Comte. *Large-Eddy Simulations of Turbulence*. Cambridge University Press, 2005.
- [78] G. Loffler, R. Sieber, M. Harasek, H. Hofbauer, R. Hauss, and J. Landauf. NO_x formation in natural gas combustion evaluation of simplified reaction schemes for CFD calculations. *Ind. Eng. Chem. Res*, 44(17) :6622–6633, 2005.
- [79] R. Lowe and A. Tomlin. Low-dimensional manifolds and reduced chemical models for tropospheric chemistry simulations. *Atmospheric Environment*, 34(15) :2425–2436, 2000.
- [80] J. Luche. *Obtention de mod eles cin etiques r eduits de combustion. Application   un m ecanisme du k eros ene*. PhD thesis, Universit e d’Orl eans, 2003.
- [81] J. Luche, M. Reuillon, J-C. Boettner, and M. Cathonnet. Reduction of large detailed kinetic mechanisms : application to kerosene / air combustion. *Combustion Science and Technology*, 176 :1935–1963, 2004.
- [82] U. Maas and V. Bykov. Some properties of the reaction-diffusion manifolds.
- [83] U. Maas and S.B. Pope. Implementation of simplified chemical kinetics based on intrinsic low-dimensional manifolds. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 24, pages 103–112. Elsevier, 1992.
- [84] M. Malandain. *Simulations massivement parall eles de la combustion   faible nombre de Mach*. PhD thesis, INSA Rouen, 2012.
- [85] P.C. Malte and D.T. Pratt. The role of energy-releasing kinetics in NO_x formation : Fuel-lean, jet-stirred co-air combustion. *Combustion Science and Technology*, 9(5-6) :221–231, 1974.
- [86] A.R. Masri, R.W. Bilger, and R.W. Dibble. Turbulent nonpremixed flames of methane near extinction : probability density functions. *Combustion and flame*, 73(3) :261–285, 1988.
- [87] S. Mathur, P.K. Tondon, and S.C. Saxena. Thermal conductivity of binary, ternary and quaternary mixtures of rare gases. *Molecular physics*, 12(6) :569–579, 1967.
- [88] J.D. Mengers and J.M. Powers. Diffusion correction to slow invariant manifolds in a short length scale limit.
- [89] C. Merlin. *Simulation num erique de la combustion turbulente : M ethode de fronti eres immerg ees pour les  coulements compressibles, application   la combustion en aval d’uneavit e*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2011.

- [90] J.B. Michel. *Modélisation de la combustion turbulente d'un mélange hétérogène en auto inflammation en vue de l'application à la simulation des moteurs Diesel*. PhD thesis, PhD thesis, IFP, EM2C, 2008. 180 BIBLIOGRAPHIE, 2008.
- [91] Jean-Baptiste Michel, Olivier Colin, and Christian Angelberger. On the formulation of species reaction rates in the context of multi-species cfd codes using complex chemistry tabulation techniques. *Combustion and Flame*, 157(4) :701–714, 2010.
- [92] J. A. Miller and C. T. Bowman. Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 15 :287–338, 1989.
- [93] V. Moureau. *Simulation aux grandes échelles de l'aérodynamique interne des moteurs à piston*. Phd thesis, Ecole Centrale Paris, 2004.
- [94] V. Moureau, P. Domingo, and L. Vervisch. Design of a massively parallel CFD code for complex geometries. *Comptes Rendus Mécanique*, (339) :141–148, 2011.
- [95] V. Moureau, P. Domingo, and L. Vervisch. From large-eddy simulation to direct numerical simulation of a lean premixed swirl flame : Filtered laminar flame-PDF modeling. *Combustion and Flame*, 158(7) :1340–1357, 2011.
- [96] J. Nafe and U. Maas. Modeling of NO formation based on ILDM reduced chemistry. *Proceedings of the Combustion Institute*, 29(1) :1379–1385, 2002.
- [97] A. Naudin. *Simulation aux grandes échelles de la combustion turbulente avec chimie détaillée tabulée*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2008.
- [98] E. B. Nauman. Residence time distributions and micromixing. *Chemical Engineering Communications*, 8(1-3) :53–131, 1981.
- [99] P.D. Nguyen, L. Vervisch, V. Subramanian, and P. Domingo. Multidimensional flamelet-generated manifolds for partially premixed combustion. *Combustion and Flame*, 157(1) :43–61, 2010.
- [100] F. Nicoud and F. Ducros. Subgrid-scale stress modelling based on the square of the velocity gradient. *Fluid Turbulence and Combustion*, 62(3) :183–200, 1999.
- [101] A. Oedra and W. Malalasekera. Eulerian particle flamelet modeling of a bluff-body CH₄/H₂ flame. *Combustion and Flame*, 151(3) :512–531, 2007.
- [102] T Passot and A Pouquet. Numerical simulation of compressible homogeneous flows in the turbulent regime. *J. Fluid Mech*, 181(1) :441–466, 1987.
- [103] S. V. Patankar. *Numerical heat transfer and fluid flow*. McGraw Hill, New York, 1980.
- [104] N. Peters. *Turbulent combustion*. Cambridge University Press, 2000.
- [105] H. Pitsch and H. Steiner. Large-eddy simulation of a turbulent piloted methane/air diffusion flame (sandia flame D). *Physics of Fluids*, 12(10) :2541, 2000.
- [106] T. Poinso, S. Candel, and A. Trouvé. Application of direct numerical simulation to premixed turbulent combustion. *Prog. Energy Combust. Flame*, 21 :531–576, 1996.
- [107] V. Raman, R.O. Fox, and A.D. Harvey. Hybrid finite-volume/transported PDF simulations of a partially premixed methane-air flame. *Combustion and Flame*, 136(3) :327 – 350, 2004.
- [108] J. Revel, J.C. Boettner, M. Cathonnet, and J.S. Bachman. Derivation of a global chemical kinetic mechanism for methane ignition and combustion. *Journal de chimie physique*, 91(4) :365–382, 1994.
- [109] Guillaume Ribert, Olivier Gicquel, Nasser Darabiha, and Denis Veynante. Tabulation of complex chemistry based on self-similar behavior of laminar premixed flames. *Combustion and flame*, 146(4) :649–664, 2006.
- [110] L. F. Richardson. *Weather Prediction by Numerical Process*. Cambridge University Press, cambridge edition, 1922.
- [111] U. Riedel, D. Schmidt, U. Maas, and J. Warnatz. Laminar flame calculations based on automatically simplified chemical kinetics. In *Proc. of the 35th Eurotherm Seminar, Compact Fired Heating Systems, Leuven, Belgium*, pages 1–14, 1994.
- [112] A. Roux. *Simulation aux grandes échelles d'un statoréacteur*. PhD thesis, Université de Toulouse - Ecole doctorale MEGeP, CERFACS - CFD Team, Toulouse, July 2009.
- [113] J. Savre. *Simulation numérique instationnaire de la combustion turbulente au sein de foyers aéronautiques et prédiction des émissions polluantes*. PhD thesis, l'ONERA, Département d'Energétique Fondamentale et Appliquée, 2010.

- [114] D. Schmidt, T. Blasenbrey, and U. Maas. Intrinsic low-dimensional manifolds of strained and unstrained flames. *Combustion Theory and Modelling*, 2(2) :135–152, 1998.
- [115] P. Schmitt, T. Poinso, B. Schuermans, and K. P. Geigle. Large-eddy simulation and experimental study of heat transfer, nitric oxide emissions and combustion instability in a swirled turbulent high-pressure burner. *Journal of Fluid Mechanics*, 570 :17–46, 2007.
- [116] Ch. Schneider, A. Dreizler, J. Janicka, and E. P. Hassel. Flow field measurements of stable and locally extinguishing hydrocarbon-fuelled jet flames. *Combust. Flame*, 135 :185–190, 2003.
- [117] L. Selle, G. Lartigue, T. Poinso, R. Koch, K.-U. Schildmacher, W. Krebs, B. Prade, P. Kaufmann, and D. Veynante. Compressible large-eddy simulation of turbulent combustion in complex geometry on unstructured meshes. *Combustion and Flame*, 137(4) :489–505, 2004.
- [118] B.A. Sen and S. Menon. Turbulent premixed flame modeling using artificial neural networks based chemical kinetics. *Proc. Combust. Inst.*, 32 :1605–1611, 2009.
- [119] M.R.H. Sheikhi, T.G. Drozda, P. Givi, F.A. Jaber, and S.B. Pope. Large eddy simulation of a turbulent nonpremixed piloted methane jet flame (Sandia Flame D). *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(1) :549 – 556, 2005.
- [120] S. Singh, J.M. Powers, and S. Paolucci. On slow manifolds of chemically reactive systems. *The Journal of chemical physics*, 117 :1482, 2002.
- [121] J. Smagorinsky. General circulation experiments with the primitive equations : 1. the basic experiment. *Monthly Weather Review*, 91 :99–164, 1963.
- [122] G.P. Smith, D.M. Golden, M. Frenklach, N.W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldenberg, C.T. Bowman, R.K. Hanson, S. Song, W.C. Gardiner Jr, et al. Gri-mech 3.0. URL : http://www.me.berkeley.edu/gri_mech, 1999.
- [123] I. Surovtsova, S. Sable, J. Pahle, and U. Kummer. Approaches to complexity reduction in a systems biology research environment (SYCAMORE). In *Simulation Conference, 2006. WSC 06. Proceedings of the Winter*, pages 1683–1689. IEEE, 2006.
- [124] H. Tennekes and J. L. Lumley. *A first course in turbulence*. M.I.T. Press, Cambridge, 1972.
- [125] T. Turányi. Application of repro-modeling for the reduction of combustion mechanisms. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 25, pages 949–955. Elsevier, 1994.
- [126] J. van Oijen. *Flamelet-generated manifolds : development and application to premixed laminar flames*. Technische Universiteit Eindhoven, 2002.
- [127] J.A. van Oijen and P. H. de Goey. Predicting NO formation with Flamelet Generated Manifolds. *Proc. European Comb. Meeting*, page 810248, 2009.
- [128] J.A. Van Oijen and de Goey L.P.H. Modelling of premixed laminar flames using flamelet-generated manifolds. *Combustion Science and Technology*, 161(1) :113–137, 2000.
- [129] O.V. Vasilyev and D.E. Goldstein. Local spectrum of commutation error in large eddy simulations. *Physics of Fluids*, 16 :470, 2004.
- [130] L. Vervisch. Study and modeling of finite rate chemistry effects in turbulent non-premixed flames. *Annual Research Briefs, Center for Turbulence Research*, 94 :411–431, 1992.
- [131] L. Vervisch, P. Domingo, G. Lodato, and D. Veynante. Scalar energy fluctuations in large-eddy simulation of turbulent flames : Statistical budgets and mesh quality criterion. *Combustion and Flame*, 157(4) :778 – 789, 2010.
- [132] P.E. Vervisch, O. Colin, J.B. Michel, and N. Darabiha. NO relaxation approach (NORA) to predict thermal NO in combustion chambers. *Combustion and Flame*, 2011.
- [133] D. Veynante and R. Knikker. Comparison between LES results and experimental data in reacting flows. *J. Turbulence*, 7(35), 2006.
- [134] D. Veynante and L. Vervisch. Turbulent combustion modeling. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 28 :193–266, 2002.
- [135] R. Vicquelin. *Tabulation de la cinétique chimique pour la modélisation et la simulation de la combustion turbulente*. PhD thesis, Ecole Centrale Paris, 2010.
- [136] A.W. Vreman, B.A. Albrecht, J.A. van Oijen, LPH de Goey, and R.J.M. Bastiaans. Premixed and nonpremixed generated manifolds in large-eddy simulation of sandia flame D and F. *Combustion and Flame*, 153(3) :394–416, 2008.

- [137] H. Wang and Y. Chen. PDF modelling of turbulent non-premixed combustion with detailed chemistry. *Chemical Engineering Science*, 59(16) :3477 – 3490, 2004.
- [138] M. Wang, J. Huang, and W. K. Bushe. Simulation of a turbulent non-premixed flame using conditional source-term estimation with trajectory generated low-dimensional manifold. *Proc. Combust. Inst.*, 31 :1701–1709, 2007.
- [139] J. Warnatz, U. Maas, and R.W. Dibble. *Combustion : physical and chemical fundamentals, modeling and simulation, experiments, pollutant formation*. Springer, 2006.
- [140] C.R. Wilke. *Journal of Chemical Physics*, 18 :517, 1950.
- [141] F. A. Williams. *Combustion Theory*. Benjamin Cummings, Menlo Park, CA, 1985.
- [142] J. Wolfrum. Bildung von stickstoffoxiden bei der verbrennung. *Chemie Ingenieur Technik*, 44(10) :656–659, May 1972.
- [143] M. Yaldizli, K. Mehravaran, and F.A. Jaber. Large-eddy simulations of turbulent methane jet flames with filtered mass density function. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 53(11–12) :2551 – 2562, 2010.
- [144] H. Yamashita, M. Shimada, and T. Takeno. A numerical study on flame stability at the transition point of jet diffusion flames. *Symposium (International) on Combustion*, 26(1) :27–34, 1996.
- [145] Y. Zeldovich. *Acta Physicochim. USSR*, 21 :577–628, 1946.
- [146] B.T. Zoller, J.M. Allegrini, U. Maas, and P. Jenny. PDF model for NO calculations with radiation and consistent NO-NO₂ chemistry in non-premixed turbulent flames. *Combustion and Flame*, 158(8) :1591–1601, 2011.