



**HAL**  
open science

# Potentiel de l'utilisation des mélanges hydrocarbures/alcools pour les moteurs à allumage commandé

Guillaume Broustail

► **To cite this version:**

Guillaume Broustail. Potentiel de l'utilisation des mélanges hydrocarbures/alcools pour les moteurs à allumage commandé. Autre. Université d'Orléans; Université du Québec. École de technologie supérieure, 2011. Français. NNT: 2011ORLE2077 . tel-01022942

**HAL Id: tel-01022942**

**<https://theses.hal.science/tel-01022942>**

Submitted on 29 Aug 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.



**UNIVERSITÉ D'ORLÉANS**



**ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

LABORATOIRE PRISME

**THÈSE** présentée par :  
**Guillaume BROUSTAIL**

soutenue le : **14 Décembre 2011**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline : Mécanique et Énergétique

**Potentiel de l'utilisation des mélanges  
hydrocarbures/alcools pour les moteurs à  
allumage commandé**

**THÈSE dirigée par :**

**Mme C. MOUNAÏM-ROUSSELLE** Professeur, Université d'Orléans  
**Mr Patrice SEERS** Professeur, ETS (Montréal)

**RAPPORTEURS :**

**Mr Marc BELLENOUE** Professeur, ENSMA de Poitiers  
**Mr Bruno RENOUE** Professeur, INSA de Rouen

**JURY :**

**Mr François GARNIER** Professeur, ETS (Montréal) et Président du jury  
**Mr Marc BELLENOUE** Professeur, ENSMA de Poitiers  
**Mr Bruno RENOUE** Professeur, INSA de Rouen  
**Mr Guillaume DAYMA** Maître de conférences HdR, Université d'Orléans  
**Mme Gladys MOREAC-NJEIM** Ingénieur de recherche HdR, RENAULT  
**Mme C. MOUNAÏM-ROUSSELLE** Professeur, Université d'Orléans  
**Mr Patrice SEERS** Professeur, ETS (Montréal)  
**Mr Fabien HALTER** Maître de conférences, Université d'Orléans



## REMERCIEMENTS

Cette thèse en cotutelle Canada/France, cofinancée par l'ADEME et Renault, a été réalisée au sein de l'équipe ECM du Laboratoire PRISME à l'Université d'Orléans et du département de Génie Mécanique de l'École de Technologie Supérieure de Montréal.

Je tiens à remercier particulièrement Christine Mounaïm-Rousselle de m'avoir accueilli au sein de son équipe à Orléans, de m'avoir donné les moyens de réaliser ce travail de thèse et d'avoir cru en ce projet et en moi.

Je tiens aussi à remercier profondément Patrice Seers de m'avoir accueilli au sein de son laboratoire à Montréal, de m'avoir fourni les ressources nécessaires afin de mener à bien le projet et pour son indéfectible soutien. Je le remercie pour les nombreuses discussions, que nous avons eu, qu'elles soient scientifiques ou plus générales, ainsi que ses précieux conseils.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Fabien Halter de m'avoir encadré. J'ai vraiment apprécié sa disponibilité, son soutien et nos nombreuses discussions.

Je tiens à remercier Bruno Renou, Professeur à l'INSA de Rouen, et Marc Bellenoue, Professeur à l'ENSMA de Poitiers, de m'avoir fait l'honneur d'être les rapporteurs de ce travail de thèse. Ma reconnaissance va également à François Garnier, Guillaume Dayma, Gladys Moréac-Njeim, Patrice Seers, Christine Mounaïm-Rousselle et Fabien Halter pour avoir accepté de juger ma thèse. Je remercie aussi Laurent Gagnepain d'avoir accepté de venir assister à ma soutenance.

Un immense merci aux membres du département de Génie Mécanique de l'École de Technologie Supérieure de Montréal et aux membres du laboratoire PRISME pour leur accueil, leur aide, leurs conseils et les bons moments passés ensemble. Je tiens à remercier en particulier Michel Drouin et Alain Grimard de l'ETS pour leur support technique, leur convivialité et les bons moments passés ensemble. Merci aussi à Patrick Blouin. Je remercie

## IV

aussi Bruno Moreau pour son aide et son expertise technique sur le montage des dispositifs expérimentaux et Julien Lemaire pour son support technique sur les baies d'analyse de gaz au laboratoire PRISME. Merci également à Benoit Bellicaud, Yahia Haidous et Stéphane Loyer.

Merci à Gladys Moréac-Njeim et Guillaume Dayma pour leur aide importante sur les aspects cinétiques de la combustion.

Je remercie les doctorants Jérémie Dernotte, Romain Rieger et Audrey Feuvrier à Orléans, ainsi que Etienne Plamondon à Montréal, pour leur accueil, leur indéfectible soutien, les intéressantes discussions que nous avons eues, mais surtout les instants agréables passés en leur compagnie et tout simplement leur amitié. Un grand merci à tous les autres doctorants et docteurs du laboratoire moteur l'École de Technologie Supérieure de Montréal et des équipes ECM, ESA et MMH du laboratoire PRISME pour leur sympathie et pour tous les excellents moments passés ensemble : Amine, Arnaud, Audrey, Bénédicte, Christophe, Jamil, Jianxi, Matthieu, Nicolas, Philippe, Pierre x2, Toni, Ying et tous ceux que j'ai pu rencontrer pendant ma thèse et que j'oublie (j'espère qu'ils me pardonneront).

Je n'oublie pas l'immense soutien reçu de ma famille et en particulier de ma mère et mon oncle. J'aimerais finir en remerciant mes amis, qui m'ont soutenu dans les moments difficiles et qui n'ont eu de cesse de croire en moi : Abdenour (Doudou), Benoit (Bobone), Céline, Émilie, Eugénie et Jérôme, Jonathan (Mini), Ludivine, Manu, Max.

*A mon père*



« Etudiez comme si vous deviez vivre toujours; vivez comme si vous deviez mourir demain. »

*Saint Isidore de Séville*

« Il y a une grande sagesse que d'oser paraître imbécile, mais il y faut un certain courage que je n'ai pas toujours eu. »

*André Gide*

« C'est parce qu'il y a un vrai danger, de vrais échecs, une vraie damnation terrestre, que les mots de victoire, de sagesse ou de joie ont un sens. »

*Simone de Beauvoir*

« Il n'y a qu'une seule chose qui puisse rendre un rêve impossible à réaliser : c'est la peur d'échouer. »

*Paulo Coelho*



## TABLE DES MATIÈRES

|  | Page |
|--|------|
| INTRODUCTION .....   | 1    |
| CHAPITRE 1 PRÉSENTATION DES ALCOOLS .....  | 7    |
| 1.1 Introduction .....   | 7    |
| 1.2 Éthanol .....  | 9    |
| 1.2.1 Moyens de fabrications .....   | 9    |
| 1.2.2 Propriétés .....   | 11   |
| 1.3 Butanol .....  | 13   |
| 1.3.1 Moyens de fabrication .....  | 14   |
| 1.3.2 Propriétés .....   | 15   |
| 1.4 Étude comparative des propriétés des carburants .....  | 16   |
| 1.5 Des solutions technologiques .....   | 18   |
| <br>PARTIE I CARACTÉRISATION FONDAMENTALE DE LA COMBUSTION<br>DES ALCOOLS .....  | 21   |
| <br>CHAPITRE 2 DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DES VITESSES DE<br>COMBUSTION LAMINAIRE POUR DES MÉLANGES<br>ISOCTANE/ALCOOLS ..... | 25   |
| 2.1 Introduction .....   | 25   |
| 2.2 Rappels sur les flammes laminaires de prémélange .....   | 25   |
| 2.2.1 Combustion laminaire de prémélange .....   | 25   |
| 2.2.2 Instabilités du front de flamme .....  | 28   |
| 2.2.2.1 Instabilités dues aux forces de gravité .....  | 28   |
| 2.2.2.2 Instabilités hydrodynamiques .....   | 28   |
| 2.2.2.3 Instabilités thermodiffusives .....  | 30   |
| 2.2.3 Théorie .....  | 31   |
| 2.2.3.1 Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés .....   | 32   |
| 2.2.3.2 Longueur de Markstein du côté des gaz frais .....  | 36   |
| 2.3 État de l'art sur les vitesses de combustion laminaire pour les carburants purs .....                                      | 37   |
| 2.3.1 Isooctane .....  | 37   |
| 2.3.1.1 Corrélation de Babkin <i>et al.</i> .....  | 37   |
| 2.3.1.2 Corrélation de Metgahlchi et Keck .....  | 38   |
| 2.3.1.3 Corrélation de Gülder .....  | 39   |
| 2.3.1.4 Corrélation de Müller <i>et al.</i> .....  | 39   |
| 2.3.1.5 Corrélation de Bradley <i>et al.</i> .....   | 40   |
| 2.3.1.6 Corrélation de Martz <i>et al.</i> .....   | 41   |
| 2.3.1.7 Corrélation de Marshall <i>et al.</i> .....  | 42   |
| 2.3.1.8 Autres données .....   | 43   |
| 2.3.1.9 Conclusions .....  | 43   |
| 2.3.2 Éthanol .....  | 45   |

|   |         |  |     |
|---|---------|--|-----|
|   | 2.3.2.1 | Corrélation de Gülder .....                                  | 45  |
|   | 2.3.2.2 | Corrélation de Liao <i>et al.</i> .....                      | 46  |
|   | 2.3.2.3 | Corrélation de Marshall <i>et al.</i> .....                  | 46  |
|   | 2.3.2.4 | Corrélation de Eisazadeh-Far <i>et al.</i> .....             | 47  |
|   | 2.3.2.5 | Autres données .....   | 48  |
|   | 2.3.2.6 | Conclusion .....   | 48  |
|   | 2.3.3   | Butanol .....  | 50  |
|   | 2.3.4   | Autres auteurs .....   | 50  |
| 2.4   |         | Dispositif expérimental .....                                | 51  |
| 2.5   |         | Détermination de la vitesse de combustion laminaire .....    | 52  |
| 2.6   |         | Résultats .....  | 56  |
|   | 2.6.1   | Effet de la pression sur les carburants purs .....           | 56  |
|   | 2.6.1.1 | Données expérimentales .....                                 | 56  |
|   | 2.6.1.2 | Comparaison avec la littérature : Isooctane .....            | 61  |
|   | 2.6.1.3 | Comparaison avec la littérature : Éthanol .....              | 65  |
|   | 2.6.1.4 | Comparaison avec la littérature : Butanol .....              | 69  |
|   | 2.6.2   | Effet de l'ajout d'alcool .....                              | 70  |
|   | 2.6.3   | Longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés .....          | 75  |
|   | 2.6.3.1 | Effet de la pression sur les carburants purs .....           | 75  |
|   | 2.6.3.2 | Effet de l'ajout d'alcool .....                              | 79  |
| 2.7   |         | Proposition d'une corrélation .....                          | 82  |
|   | 2.7.1   | Effet de la richesse et de la pression .....                 | 82  |
|   | 2.7.2   | Effet des mélanges .....                                     | 83  |
|   | 2.7.3   | Validation de la corrélation .....                           | 84  |
| 2.8   |         | Conclusion .....   | 88  |
| <br>  |         |  |     |
| CHAPITRE 3 ÉTUDE NUMÉRIQUE SUR LES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE ..... |         |  | 91  |
| 3.1   |         | Introduction .....   | 91  |
| 3.2   |         | Description du schéma cinétique .....                        | 91  |
| 3.3   |         | Résultats .....  | 93  |
|   | 3.3.1   | Carburants purs .....  | 93  |
|   | 3.3.2   | Mélanges isooctane/éthanol .....                             | 100 |
|   | 3.3.3   | Mélanges isooctane/butanol .....                             | 102 |
|   | 3.3.4   | Conclusion .....   | 105 |
| 3.4   |         | Étude de simulation avec le code PSR .....                   | 106 |
|   | 3.4.1   | Oxydation de l'isooctane .....                               | 108 |
|   | 3.4.2   | Oxydation de l'éthanol .....                                 | 109 |
|   | 3.4.2.1 | Données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c) .....      | 110 |
|   | 3.4.2.2 | Données expérimentales de Leplat <i>et al.</i> (2010g) ..... | 113 |
|   | 3.4.3   | Oxydation du Butanol .....                                   | 118 |
|   | 3.4.3.1 | Données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008d) .....      | 118 |
|   | 3.4.3.2 | Données expérimentales de Dagaut <i>et al.</i> (2009c) ..... | 121 |
|   | 3.4.4   | Conclusion .....   | 125 |
| 3.5   |         | Analyse de sensibilité .....                                 | 126 |

|  |  |     |
|--|--|-----|
| 3.5.1  | Étude de sensibilité sur le débit .....  | 128 |
| 3.5.2  | Étude de sensibilité des réactions de décomposition du carburant<br>sur le débit.....                | 132 |
| 3.6  | Conclusion .....   | 134 |
| PARTIE II APPLICATION DANS LES MOTEURS À ALLUMAGE<br>COMMANDÉ.....   |  | 137 |
| CHAPITRE 4 INFLUENCE DE L'AJOUT D'ALCOOLS<br>SUR LA PROPAGATION DE LA COMBUSTION DANS UN<br>MOTEUR TRANSPARENT À ALLUMAGE COMMANDÉ.....                      |  | 141 |
| 4.1  | Introduction.....  | 141 |
| 4.2  | État de l'art.....   | 141 |
| 4.2.1  | Caractéristiques de la combustion des alcools dans les moteurs<br>à allumage commandé.....           | 142 |
| 4.2.2  | Analyse d'images.....  | 143 |
| 4.3  | Montage expérimental .....   | 145 |
| 4.3.1  | Le moteur monocylindre à accès optiques.....   | 145 |
| 4.3.2  | Les conditions de fonctionnement .....   | 147 |
| 4.3.3  | Le système d'acquisition d'images.....   | 148 |
| 4.4  | Résultats.....   | 150 |
| 4.4.1  | Corrélations entre l'évolution temporelle de la flamme et la fraction<br>massique de gaz brûlés..... | 151 |
| 4.4.2  | Évolution temporelle de la flamme.....   | 153 |
| 4.4.2.1  | Carburants purs .....  | 153 |
| 4.4.2.2  | Mélanges iso-octane/éthanol.....   | 157 |
| 4.4.2.3  | Mélanges iso-octane/butanol.....   | 161 |
| 4.4.2.4  | Conclusion .....   | 166 |
| 4.4.3  | Les écart-types .....  | 167 |
| 4.4.4  | Corrélations avec les vitesses de combustion laminaire.....  | 169 |
| 4.4.5  | Corrélations avec le taux d'étirement .....  | 175 |
| 4.4.6  | Délais d'allumage .....  | 176 |
| 4.5  | Conclusion .....   | 178 |
| CHAPITRE 5 INFLUENCE DE L'ADDITION D'ALCOOLS<br>DANS LE CARBURANT SUR LES ÉMISSIONS POLLUANTES<br>D'UN MOTEUR À ALLUMAGE COMMANDÉ À ISO-<br>PERFORMANCE..... |  | 181 |
| 5.1  | Introduction.....  | 181 |
| 5.2  | État de l'art.....   | 182 |
| 5.3  | Montage expérimental .....   | 184 |
| 5.4  | Points d'essais.....   | 186 |
| 5.5  | Impact sur la Performance et le réglage moteur .....   | 187 |
| 5.6  | Impact sur les Polluants réglementés.....  | 190 |
| 5.7  | Impact sur les Polluants non-réglés.....   | 196 |
| 5.8  | Conclusion .....   | 210 |

|   |     |
|---|-----|
| CONCLUSION .....  | 213 |
| PERSPECTIVES .....  | 217 |
| ANNEXE I PRÉSENTATION DES ALCOOLS.....  | 219 |
| ANNEXE II COMPARAISON ENTRE LES DONNÉES EXPÉRIMENTALES<br>ET LA LITTÉRATURE SUR LES VITESSES DE COMBUSTION<br>LAMINAIRE .....   | 221 |
| ANNEXE III CORRÉLATION SUR LES VITESSES DE COMBUSTION<br>LAMINAIRE POUR DES MÉLANGES ISOCTANE/ALCOOLS<br>EN FONCTION DE LA RICHESSE ET DE LA PRESSION<br>INITIALE ..... | 229 |
| ANNEXE IV VALIDATION DE LA CORRÉLATION SUR LES VITESSES DE<br>COMBUSTION LAMINAIRE DES MÉLANGES<br>ISOCTANE/ALCOOL.....   | 235 |
| ANNEXE V PARAMÈTRES DE CONVERGENCE DANS CANTERA .....   | 237 |
| ANNEXE VI COMPARAISON ENTRE LES DONNÉES EXPÉRIMENTALES<br>ET LES SIMULATIONS SUR LES VITESSES DE COMBUSTION<br>LAMINAIRE .....  | 241 |
| ANNEXE VII INFLUENCE DE L'AJOUT D'ALCOOL<br>SUR LA PROPAGATION DE LA COMBUSTION DANS UN<br>MOTEUR TRANSPARENT À ALLUMAGE COMMANDÉ.....                                  | 247 |
| LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....  | 251 |

## LISTE DES TABLEAUX

|   | Page |
|---|------|
| Tableau 1-1: Principales propriétés des carburants.....   | 8    |
| Tableau 2-1: Constantes de la corrélation de Metghalchi et Keck (1982c) pour l'isooctane.....   | 38   |
| Tableau 2-2: Constantes de la corrélation de Gülder (1984c) pour l'isooctane .....  | 39   |
| Tableau 2-3: Constantes de la corrélation de Müller <i>et al</i> (1997c) pour l'isooctane.....  | 40   |
| Tableau 2-4: Constantes de la corrélation de Bradley <i>et al.</i> (1998c) pour l'isooctane ....  | 41   |
| Tableau 2-5: Constantes de la corrélation de Martz <i>et al.</i> (2011i) pour l'isooctane.....  | 42   |
| Tableau 2-6: Constantes de la corrélation de Marshall <i>et al.</i> (2011k) pour l'isooctane.....   | 42   |
| Tableau 2-7: Récapitulatif des domaines de validités des corrélation pour l'isooctane.....  | 44   |
| Tableau 2-8: Constantes de la corrélation de Gülder (1984c) pour l'éthanol.....   | 46   |
| Tableau 2-9: Constantes de la corrélation de Liao <i>et al.</i> (2007g) pour l'éthanol .....  | 46   |
| Tableau 2-10: Constantes de la corrélation de Marshall <i>et al.</i> (2011k) pour l'éthanol ....  | 47   |
| Tableau 2-11: Constantes de la corrélation de Eisazadeh-Far <i>et al.</i> (2011f) pour l'éthanol .....  | 48   |
| Tableau 2-12 : Récapitulatif des domaines de validités des corrélation pour l'éthanol....   | 49   |
| Tableau 2-13: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa...62 |      |
| Tableau 2-14: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa...64 |      |
| Tableau 2-15 : Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa...66  |      |

|               |   |     |
|---------------|---|-----|
| Tableau 2-16: | Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa...68         | 68  |
| Tableau 2-17: | Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour le butanol à une température initiale de 423 K et pour différentes pressions initiales.....70  | 70  |
| Tableau 2-18: | Valeurs des coefficients de la corrélation en richesse et en pression .....83   | 83  |
| Tableau 2-19: | Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs entre la corrélation et les données expérimentales pour les mélanges isooctane/butanol seuls, les mélanges isooctane/éthanol seuls et les mélanges isooctane/alcool réunis.....87                | 87  |
| Tableau 3-1:  | Écarts relatifs entre les résultats des simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire pour les carburants purs .....98   | 98  |
| Tableau 3-2:  | Valeurs de vitesses de combustion laminaire à 423 K, 0.1 MPa et $\varphi=1.0$ pour les trois carburants purs obtenues expérimentalement et numériquement à l'aide du schéma cinétique tri-espèces et des schémas des carburants purs seuls .....128 | 128 |
| Tableau 4-1:  | Tendances observées sur la phase initiale de la propagation de la combustion pour les mélanges avec éthanol et butanol comparés à Malcolm <i>et al.</i> (2008e).....144   | 144 |
| Tableau 4-2:  | Points de fonctionnement.....148  | 148 |
| Tableau 4-3:  | Écarts relatifs sur $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les deux alcools purs par rapport à l'isooctane.....155  | 155 |
| Tableau 4-4:  | Écarts relatifs sur $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/éthanol par rapport à l'isooctane pour $\varphi=1.0$ .....158   | 158 |
| Tableau 4-5:  | Écarts relatifs sur $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/éthanol par rapport à l'isooctane pour $\varphi=0.8$ .....160   | 160 |

|               |  |     |
|---------------|--|-----|
| Tableau 4-6:  | Écart relatifs sur $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50<br>et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/butanol par rapport<br>à l'isooctane pour $\varphi=1.0$ .....            | 163 |
| Tableau 4-7:  | Écart relatifs sur $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50<br>et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/butanol<br>par rapport à l'isooctane pour $\varphi=0.8$ .....            | 165 |
| Tableau 4-8:  | Écart relatifs sur les écarts-type des $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50<br>et de la durée de combustion par rapport à l'isooctane pour les deux<br>alcools et les deux richesses..... | 169 |
| Tableau 4-9:  | Composition des mélanges initiaux pour les simulations des délais<br>d'initiation.....   | 177 |
| Tableau 5-1:  | Analyseurs utilisées pour mesurer les polluants .....  | 185 |
| Tableau 5-2:  | Points de fonctionnement réalisés sur le moteur monocylindre opaque..  | 187 |
| Tableau 5-3 : | Richesse limite acceptable de fonctionnement en fonction de la<br>concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/éthanol et<br>isooctane/butanol .....   | 190 |
| Tableau 5-4:  | Compositions initiales des mélanges utilisées<br>dans les simulations PSR avec les carburants purs .....   | 191 |
| Tableau 5-5:  | Résumé des tendances observées pour les polluants<br>et la consommation spécifique de carburant pour les deux alcools<br>comparés à l'isooctane .....  | 209 |



## LISTE DES FIGURES

|              |  | Page |
|--------------|--|------|
| Figure 1-1:  | Les voies de fabrication de l'éthanol Guibet (1997b) .....   | 11   |
| Figure 1-2:  | Représentation de la molécule de Butan-1-ol .....  | 13   |
| Figure 1-3:  | Représentation de la molécule de Butan-2-ol .....  | 13   |
| Figure 1-4:  | Représentation de la molécule du Méthylpropan-1-ol.....  | 13   |
| Figure 1-5:  | Représentation de la molécule du Méthylpropan-2-ol.....  | 13   |
| Figure 2-1:  | Propagation d'une flamme plane laminaire prémélangée .....   | 26   |
| Figure 2-2:  | Structure d'une flamme plane laminaire prémélangée .....   | 27   |
| Figure 2-3:  | Instabilités hydrodynamiques d'un front de flamme laminaire .....  | 29   |
| Figure 2-4:  | Instabilités thermodiffusives d'un front de flamme laminaire.....  | 30   |
| Figure 2-5:  | Schéma d'une flamme sphérique .....  | 36   |
| Figure 2-6:  | Évolution des vitesses de combustion laminaire<br>en fonction de la pression pour les corrélations de la littérature<br>présentées pour l'isooctane pour $\phi=1.0$ (a) et $\phi=0.8$ (b) et à une<br>température initiale de 423 K..... | 45   |
| Figure 2-7:  | Évolution des vitesses de combustion laminaire<br>en fonction de la pression pour les corrélations de la littérature<br>présentées pour l'éthanol pour $\phi=1.0$ (a) et $\phi=0.8$ (b)<br>et à une température initiale de 423 K .....  | 49   |
| Figure 2-8:  | Schéma du système d'ombroscopie.....   | 53   |
| Figure 2-9:  | Évolution temporelle du front de flamme pour du E75<br>( $\phi=1$ , $P=0.1$ MPa, $T=423$ K).....   | 54   |
| Figure 2-10: | Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse à la<br>température initiale de 423 K et différentes pressions initiales<br>(0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa) pour B0/E0 (a), B100 (b) et E100 (c) .....                             | 58   |
| Figure 2-11: | Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les<br>carburants purs à une température initiale de 423 K et des pressions<br>initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....                   | 59   |

|              |  |    |
|--------------|--|----|
| Figure 2-12: | Évolution temporelle du front de flamme pour du E100 ( $\phi=1.3$ , $P=0.5$ MPa, $T=423$ K).....   | 60 |
| Figure 2-13: | Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa .....                              | 62 |
| Figure 2-14: | Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa .....                              | 63 |
| Figure 2-15: | Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa .....                                | 66 |
| Figure 2-16: | Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa .....                                | 67 |
| Figure 2-17: | Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour du butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa, 0.3 MPa, 0.5 MPa et 1.0 MPa..... | 69 |
| Figure 2-18: | Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....                        | 71 |
| Figure 2-19: | Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....                        | 72 |
| Figure 2-20: | Vitesse de combustion laminaire en fonction de la concentration en butanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....                 | 73 |
| Figure 2-21: | Vitesse de combustion laminaire en fonction de la concentration en éthanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....                 | 74 |

|              |  |    |
|--------------|--|----|
| Figure 2-22: | Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa pour B0/E0 (a), B100 (b) et E100 (c) .....  | 77 |
| Figure 2-23: | Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les carburants purs à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....  | 78 |
| Figure 2-24: | Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....   | 80 |
| Figure 2-25: | Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....   | 81 |
| Figure 2-26: | Comparaisons sur les vitesses de combustion laminaire entre l'expérimental et la corrélation en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) ..... | 85 |
| Figure 2-27: | Comparaisons sur les vitesses de combustion laminaire entre l'expérimental et la corrélation en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) ..... | 86 |
| Figure 3-1:  | Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les carburants purs à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....              | 94 |
| Figure 3-2:  | Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa pour le E0/B0 (a), le B100 (b) et le E100 (c).....                      | 97 |

|              |   |     |
|--------------|---|-----|
| Figure 3-3 : | Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour le E0, le E50 et le E100 à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....  | 101 |
| Figure 3-4:  | Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour le B0, le B50 et le B100 à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) .....  | 103 |
| Figure 3-5:  | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Moréac <i>et al.</i> (2006g) sur la concentration de $\text{IC}_4\text{H}_8$ (a) et $\text{C}_8\text{H}_{18}$ et $\text{CO}_2$ (b) en fonction de la température pour $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{\text{carb}}=0.00125$ et $\tau=1\text{s}$ .....  | 108 |
| Figure 3-6:  | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c) sur la concentration de $\text{CH}_4$ et $\text{C}_2\text{H}_4$ (a), $\text{CH}_3\text{CHO}$ et $\text{CH}_2\text{O}$ (b), $\text{C}_2\text{H}_6$ et $\text{C}_3\text{H}_6$ (c) et $\text{C}_2\text{H}_2$ (d) en fonction de la température pour $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{\text{carb}}=0.002$ et $\tau=0.7\text{s}$ .....                                     | 111 |
| Figure 3-7:  | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales Dagaut et Togbé (2008c) sur la concentration de $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ et de $\text{CO}_2$ en fonction de la température pour $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{\text{carb}}=0.002$ et $\tau=0.7\text{s}$ .....  | 112 |
| Figure 3-8:  | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Leplat <i>et al.</i> (2010g) sur la concentration de $\text{CH}_4$ et $\text{C}_2\text{H}_4$ (a), $\text{CH}_3\text{CHO}$ et $\text{CH}_2\text{O}$ (b), $\text{C}_2\text{H}_2$ et $\text{C}_2\text{H}_6$ (c) et $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ et $\text{CO}_2$ (d) en fonction de la température pour $\phi=1.0$ , une pression de 0.1MPa avec $X_{\text{carb}}=0.002$ et $\tau=0.07\text{s}$ .....      | 114 |
| Figure 3-9:  | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Leplat <i>et al.</i> (2010g) sur la concentration de $\text{CH}_4$ et $\text{C}_2\text{H}_4$ (a), $\text{CH}_3\text{CHO}$ et $\text{CH}_2\text{O}$ (b), $\text{C}_2\text{H}_6$ (c) et $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ et $\text{CO}_2$ (d) en fonction de la température pour $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{\text{carb}}=0.002$ et $\tau=0.7\text{s}$ .....                                | 116 |
| Figure 3-10: | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008d) sur la concentration de $\text{CH}_4$ et $\text{C}_4\text{H}_8$ (a), $\text{CH}_3\text{CHO}$ et $\text{CH}_2\text{O}$ (b), $\text{C}_3\text{H}_6$ et $\text{C}_3\text{H}_7\text{CHO}$ (c) et $\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$ et $\text{CO}_2$ (d) en fonction de la température pour $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{\text{carb}}=0.001$ et $\tau=0.7\text{s}$ ..... | 119 |

|              |  |     |
|--------------|--|-----|
| Figure 3-11: | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut <i>et al.</i> (2009c) sur la concentration de CH <sub>4</sub> et C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> (a), CH <sub>3</sub> CHO et CH <sub>2</sub> O (b) et C <sub>4</sub> H <sub>8</sub> et C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> (c) et C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> et C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> CHO (d) en fonction de la température pour $\varphi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{carb}=0.001$ et $\tau=0.7s$ ..... | 122 |
| Figure 3-12: | Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut <i>et al.</i> (2009c) sur la concentration de C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> (a) et C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> OH et CO <sub>2</sub> (b) en fonction de la température pour $\varphi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec $X_{carb}=0.001$ et $\tau=0.7s$ .....   | 123 |
| Figure 3-13: | Étude de sensibilité des principales réactions sur le débit pour l'isooctane.....  | 130 |
| Figure 3-14: | Étude de sensibilité des principales réactions sur le débit pour l'éthanol.....  | 131 |
| Figure 3-15: | Étude de sensibilité des principales réactions sur le débit pour le butanol.....   | 131 |
| Figure 3-16: | Étude de sensibilité des réactions impliquant l'isooctane sur le débit.....  | 132 |
| Figure 3-17: | Étude de sensibilité des réactions impliquant l'éthanol sur le débit.....  | 133 |
| Figure 3-18: | Étude de sensibilité des réactions impliquant le butanol sur le débit.....   | 133 |
| Figure 4-1:  | Photo du moteur monocylindre à accès optiques en combustion et schéma du montage expérimental.....   | 146 |
| Figure 4-2:  | Évolution temporelle de la flamme de B100 à $\varphi=1.0$ .....  | 149 |
| Figure 4-3:  | Évolution des CA5, CA10 et CA50 en fonction de $\theta_{0,1}$ à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b) pour l'ensemble des mélanges de carburants étudiés.....   | 151 |
| Figure 4-4:  | Évolution des CA5, CA10 et CA50 en fonction de $\theta_{0,5}$ à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b) pour l'ensemble des mélanges de carburants étudiés.....   | 152 |
| Figure 4-5:  | Évolution des CA90-CA10 en fonction des $\theta_{0,1}$ et $\theta_{0,5}$ à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b) pour l'ensemble des carburants étudiés.....  | 152 |
| Figure 4-6:  | Évolution temporelle de $A_{norm}$ pour les trois carburants purs à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b).....  | 154 |
| Figure 4-7:  | Évolution de $\Delta$ en fonction de $A_{norm}$ pour les alcools purs à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b).....  | 155 |

|              |  |     |
|--------------|--|-----|
| Figure 4-8:  | Évolution temporelle de $A_{norm}$ (a) et évolution de $\Delta$ en fonction de $A_{norm}$ (b) pour les mélanges isooctane/éthanol à $\varphi=1.0$ ...  | 157 |
| Figure 4-9:  | Évolution des $\theta_{0.1}$ et $\theta_{0.5}$ (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/éthanol et $\varphi=1.0$ .....  | 158 |
| Figure 4-10: | Évolution temporelle de $A_{norm}$ (a) et évolution de $\Delta$ en fonction de $A_{norm}$ (b) pour les mélanges isooctane/éthanol à $\varphi=0.8$ ...  | 159 |
| Figure 4-11: | Évolution des $\theta_{0.1}$ et $\theta_{0.5}$ (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/éthanol pour $\varphi=0.8$ .....  | 160 |
| Figure 4-12: | Évolution temporelle de $A_{norm}$ (a) et évolution de $\Delta$ en fonction de $A_{norm}$ (b) pour les mélanges isooctane/butanol à $\varphi=1.0$ ...  | 162 |
| Figure 4-13: | Évolution des $\theta_{0.1}$ et $\theta_{0.5}$ (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/butanol pour $\varphi=1.0$ .....  | 163 |
| Figure 4-14: | Évolution temporelle de $A_{norm}$ (a) et évolution de $\Delta$ en fonction de $A_{norm}$ (b) pour les mélanges isooctane/butanol à $\varphi=0.8$ ...  | 164 |
| Figure 4-15: | Évolution des $\theta_{0.1}$ et $\theta_{0.5}$ (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/butanol pour $\varphi=0.8$ .....  | 165 |
| Figure 4-16: | Écart-type du $\theta_{0.1}$ (a) et $\theta_{0.5}$ (b) en fonction de la concentration en alcool .....   | 167 |
| Figure 4-17: | Écart-type du CA5 (a), CA10 (b), CA50 (c) et de la Durée de combustion (d) en fonction de la concentration en alcool .....   | 168 |
| Figure 4-18: | Évolution des $\theta_{0.1}$ , $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10 et CA50 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélations de Kobayashi et al. (1998e)) à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.1 MPa ..... | 171 |
| Figure 4-19: | Évolution de $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélations de Kobayashi et al. (1998e)) à $\varphi=1.0$ (a) et à $\varphi=0.8$ (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.3 MPa .....              | 172 |

|              |   |     |
|--------------|---|-----|
| Figure 4-20: | Évolution de $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Kobayashi et al. (1998e)) à $\phi=1.0$ (a) et à $\phi=0.8$ (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.5 MPa .....173 | 173 |
| Figure 4-21: | Évolution de $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Kobayashi et al. (1998e)) à $\phi=1.0$ (a) et à $\phi=0.8$ (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 1.0 MPa .....173 | 173 |
| Figure 4-22: | Évolution du taux d'étirement K en fonction du rayon équivalent pour les trois carburants purs à $\phi=1.0$ (a) et à $\phi=0.8$ (b) .....175  | 175 |
| Figure 4-23: | Délais d'initiation en fonction de la température pour les trois carburants purs à 1.0 MPa pour $\phi=1.0$ .....177   | 177 |
| Figure 5-1:  | Avance à l'allumage en fonction de la concentration en alcool .....188  | 188 |
| Figure 5-2:  | Consommation spécifique de carburant (a) et émissions de CO <sub>2</sub> (b) en fonction de la concentration en alcool pour les mélanges à l'éthanol et au butanol sur les deux points de fonctionnement .....189   | 189 |
| Figure 5-3:  | Émissions de HC totaux non-corrigés à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool .....192   | 192 |
| Figure 5-4:  | Émissions de HC totaux corrigés en fonction de la concentration en alcool pour les deux points de fonctionnement .....193   | 193 |
| Figure 5-5:  | Concentrations de HC totaux issues des simulations PSR en fonction de la température .....193   | 193 |
| Figure 5-6:  | Émissions de CO 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool .....194   | 194 |
| Figure 5-7:  | Émissions de NO <sub>x</sub> à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI en fonction de la concentration en alcool .....195  | 195 |
| Figure 5-8:  | Évolution de la chaleur spécifique à pression constante des gaz brûlés $C_{p,b}$ en fonction de la température initiale du mélange air/carburant pour les trois carburants purs à 1.0 MPa pour $\phi=0.8$ (a) et $\phi=1.0$ (b) .....196                                  | 196 |
| Figure 5-9:  | Émissions de C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> en fonction de la concentration en alcool .....197   | 197 |

|              |  |     |
|--------------|--|-----|
| Figure 5-10: | Concentrations de $C_2H_4$ issues des simulations PSR en fonction de la température .....  | 198 |
| Figure 5-11: | Émissions de $CH_4$ à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool .....   | 198 |
| Figure 5-12: | Concentrations de $CH_4$ issues des simulations PSR en fonction de la température .....  | 199 |
| Figure 5-13: | Émissions de $C_2H_2$ à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool .....   | 200 |
| Figure 5-14: | Concentrations de $C_2H_2$ issues des simulations PSR en fonction de la température .....  | 202 |
| Figure 5-15: | Émissions de $C_6H_6$ en fonction de la concentration en alcool pour les mélanges à l'éthanol et au butanol sur les deux points de fonctionnement.....         | 202 |
| Figure 5-16: | Concentrations de $C_6H_6$ issues des simulations PSR en fonction de la température .....  | 203 |
| Figure 5-17: | Émissions de $CH_3CHO$ 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool .....  | 204 |
| Figure 5-18: | Concentrations de $CH_3CHO$ issues des simulations PSR en fonction de la température.....  | 205 |
| Figure 5-19: | Émissions de $CH_2O$ à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool .....  | 206 |
| Figure 5-20: | Émissions de $CH_4$ et $CH_2O$ adimensionnées par rapport à l'isooctane à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration d'alcool..... | 208 |
| Figure 5-21: | Concentrations de $CH_2O$ issues des simulations PSR en fonction de la température.....  | 208 |

## NOMENCLATURE

### Lettres latines

|                               |   |                     |
|-------------------------------|---|---------------------|
| A                             | Aire de la flamme   | m <sup>2</sup>      |
| A <sub>p</sub>                | Facteur pré-exponentielle   | -                   |
| A <sub>f</sub>                | Surface de flamme projetée  | pixels <sup>2</sup> |
| A <sub>norm</sub>             | Surface de flamme projetée adimensionnée  | -                   |
| B <sub>C</sub>                | Facteur de fréquence  | -                   |
| C <sub>p</sub>                | Chaleur spécifique à pression constante   | J/(mol.K)           |
| D <sub>carb</sub>             | Débit de carburant  | kg/s                |
| D <sub>m</sub>                | Diffusion moléculaire   | m <sup>2</sup> /s   |
| D <sub>th</sub>               | Diffusion thermique   | m <sup>2</sup> /s   |
| E <sub>a</sub>                | Énergie d'activation  | J/mol               |
| E <sub>carb</sub>             | Énergie chimique injectée par cycle   | J/cycle             |
| k                             | Vitesse d'une réaction chimique   |                     |
| K                             | Taux d'étirement  | s <sup>-1</sup>     |
| L <sub>b</sub>                | Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés  | mm                  |
| Le                            | Nombre de Lewis   | -                   |
| L <sub>u</sub>                | Longueur de Markstein du côté des gaz frais   | mm                  |
| n                             | puissance sur la température dans le calcul de k, n degré de réaction globale               | -                   |
| n <sub>C</sub>                | Nombre de carbone dans la molécule de carburant   | -                   |
| N                             | Nombre de moles de produits de la réaction  | mol                 |
| P                             | Pression  | MPa                 |
| P <sub>0</sub>                | Pression de référence   | MPa                 |
| Q                             | Chaleur de réaction   | J                   |
| R                             | Constante des gaz parfait (= 8.314)   | J/(mol.K)           |
| R <sub>f</sub>                | Rayon de la flamme  | m                   |
| S <sub>b</sub> <sup>0</sup>   | Vitesse de propagation laminaire non-étirée des gaz brûlés                                  | m/s                 |
| S <sub>b</sub>                | Vitesse de propagation laminaire étirée des gaz brûlés                                      | m/s                 |
| S <sub>L</sub>                | Vitesse de combustion laminaire étirée des gaz frais  | cm/s                |
| S <sub>L</sub> <sup>0</sup>   | Vitesse de combustion laminaire non-étirée des gaz frais                                    | cm/s                |
| S <sub>L,0</sub> <sup>0</sup> | Vitesse de combustion laminaire non-étirée des gaz frais à T <sub>0</sub> et P <sub>0</sub> | cm/s                |
| S <sub>T</sub>                | Vitesse de combustion turbulente  | cm/s                |
| t                             | Temps   | s                   |
| T                             | Température   | K                   |
| T <sub>0</sub>                | Température de référence  | K                   |
| T <sup>0</sup>                | Température d'équilibre ou température interne  | K                   |
| T <sub>i</sub>                | Température d'auto-inflammation   | K                   |
| V <sub>Alc</sub>              | Pourcentage volumique d'alcool dans un mélange  | %                   |
| X                             | Fraction molaire  | -                   |
| Y                             | Fraction massique   | -                   |

Ze Nombre de Zeldovich -

### Lettres grecques

|                        |   |                   |
|------------------------|---|-------------------|
| $\alpha$ ou $\alpha_T$ | Coefficient de puissance sur la température   | -                 |
| $\beta$ ou $\beta_P$   | Coefficient de puissance sur la pression  | -                 |
| $\delta$               | Épaisseur de flamme   | mm                |
| $\delta_L$             | Épaisseur de flamme laminaire   | mm                |
| $\eta$                 | Rendement moyen   | %                 |
| $\theta_{XX}$          | Angle vilebrequin correspondant à une valeur XX de $\Lambda_{norm}$                           | DV (Ap PMH)       |
| $\lambda$              | Conductivité thermique  | J/(K.m.s)         |
| $\rho$                 | Masse volumique   | kg/m <sup>3</sup> |
| $\varphi$ ou $\Phi$    | Richesse du mélange air/carburant   | -                 |
| $\Psi$                 | Nombre adimensionné   | -                 |
| $\Delta$               | Écart entre $\Delta t_s$ d'un carburant et $\Delta t_s$ de l'isooctane ( $\Delta t_{s,ref}$ ) | ms                |
| $\Delta t_s$           | Temps après l'allumage  | ms                |
| $\Delta\theta$         | $\Delta\theta = \theta_{0.5} - \theta_{0.1}$  | DV                |
| $\omega$               | Taux de réaction  | -                 |

### Indices et exposants

|                                |  |   |
|--------------------------------|--|---|
| a                              | Activation                                     | - |
| ad                             | Adiabatique                                    | - |
| Alc                            | Alcool   | - |
| b                              | Gaz brûlés                                     | - |
| C <sub>8</sub> H <sub>18</sub> | Isooctane                                      | - |
| F ou carb                      | Carburant                                      | - |
| max ou m                       | Maximal  | - |
| mel                            | Mélange isooctane/alcool                       | - |
| p                              | Zone de préchauffage d'une flamme              | - |
| r                              | Zone de réaction d'une flamme                  | - |
| ref                            | Référence (ici l'isooctane)                    | - |
| sto                            | Mélange stœchiométrique                        | - |
| u                              | Gaz frais                                      | - |
| vol                            | Pourcentage volumique d'alcool dans un mélange | % |
| $\infty$                       | Initiale                                       | - |

### Acronymes

|       |                             |   |
|-------|-----------------------------|---|
| ABE   | Acétone, Butanol et Éthanol | - |
| ApPMH | Après le Point Mort Haut    | - |
| AvPMH | Avant le Point Mort Haut    | - |

|           |  |               |
|-----------|--|---------------|
| BXX       | Mélange de XX% en volume de butanol dans l'isooctane                                 | -             |
| CAXX      | Angle vilebrequin où XX% du carburant est brûlé                                      | DV<br>(ApPMH) |
| CAYY-CAXX | Différence entre deux angles vilebrequin pour lesquels YY-XX% du carburant est brûlé | DV            |
| CLD       | Chemiluminescence Detection  | -             |
| CSC       | Consommation spécifique de carburant   | g/kWh         |
| DV        | Degré vilebrequin  | -             |
| EXX       | Mélange de XX% en volume d'éthanol dans l'isooctane                                  | -             |
| FC        | Facteur correctif pour les HC Totaux   | -             |
| FID       | Flame Ionization Detector  | -             |
| FTIR      | Fourier Transformed Infrared Spectroscopy  | -             |
| IDE       | Injection Directe Essence  | -             |
| INRS      | Institut National de Recherche et de Sécurité  | -             |
| JSR       | Jet-Stirred Reactor  | -             |
| LOL       | Lean Operating Limit   | -             |
| MON       | Indice d'octane moteur (Motor Octane Number)   | -             |
| NDIR      | Nondispersive Infrared   | -             |
| OCDE      | Organisation de coopération et de développement économique                           | -             |
| PCI       | Pouvoir calorifique inférieur  | J/kg          |
| PCO       | Pouvoir Combustible  | -             |
| PMD       | Polarization mode dispersion   | -             |
| PME       | Pression moyenne effective   | bars          |
| PMI       | Pression moyenne indiquée  | bars          |
| PSR       | Perfectly Stirred Reactor  | -             |
| RON       | Indice d'octane recherche (Research Octane Number)                                   | -             |
| VUL       | Véhicule utilitaire léger  | -             |



## INTRODUCTION

La protection de l'environnement et de l'écologie sont, depuis quelques années, au cœur des préoccupations de la population mondiale. L'arrivée de publications sur l'impact de certains polluants sur la santé, a mis aussi cette dernière au centre des débats (Jacobson (2007e)). De plus, avec l'émergence de certains pays, comme la Chine, l'Inde et le Brésil, gros consommateurs d'énergie, et donc de pétrole en particulier, les réserves vont s'épuiser dans les années à venir (Figure I-1). Diminuer les rejets d'émissions polluantes et de gaz à effets de serre dans l'atmosphère, tout en augmentant notre diversification et indépendance énergétique vis-à-vis du pétrole afin de devancer sa raréfaction apparaît donc comme une nécessité.

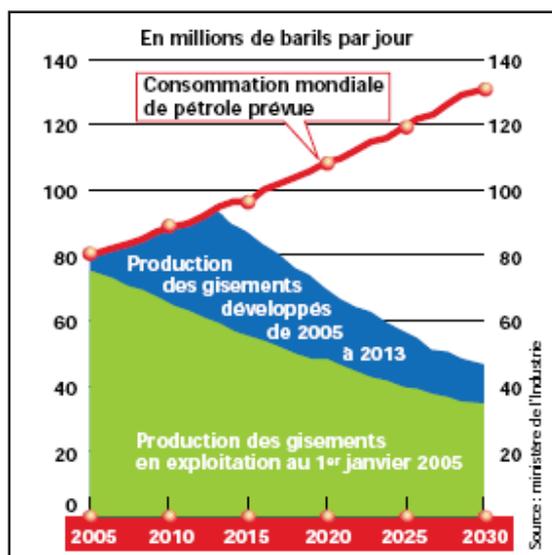


Figure I-1: Consommation mondiale de pétrole entre 2005 et 2030  
Tirée d'un article de Duval et Chevalier paru dans Alternatives Economiques (2005b)

Sous l'effet de la pression populaire et scientifique, les acteurs économiques et industriels, tout comme le monde politique, ont dû se résoudre à prendre en compte et traiter ce problème. Le secteur automobile et des transports en général sont directement touchés par cette prise de conscience, car le secteur du transport est le deuxième plus gros émetteur de CO<sub>2</sub> (principal gaz à effet de serre) en Europe en 2010 (Figure I-2). Autre problème : le parc

automobile ne cesse de croître et devrait continuer de croître dans les années à venir (Figure I-3).

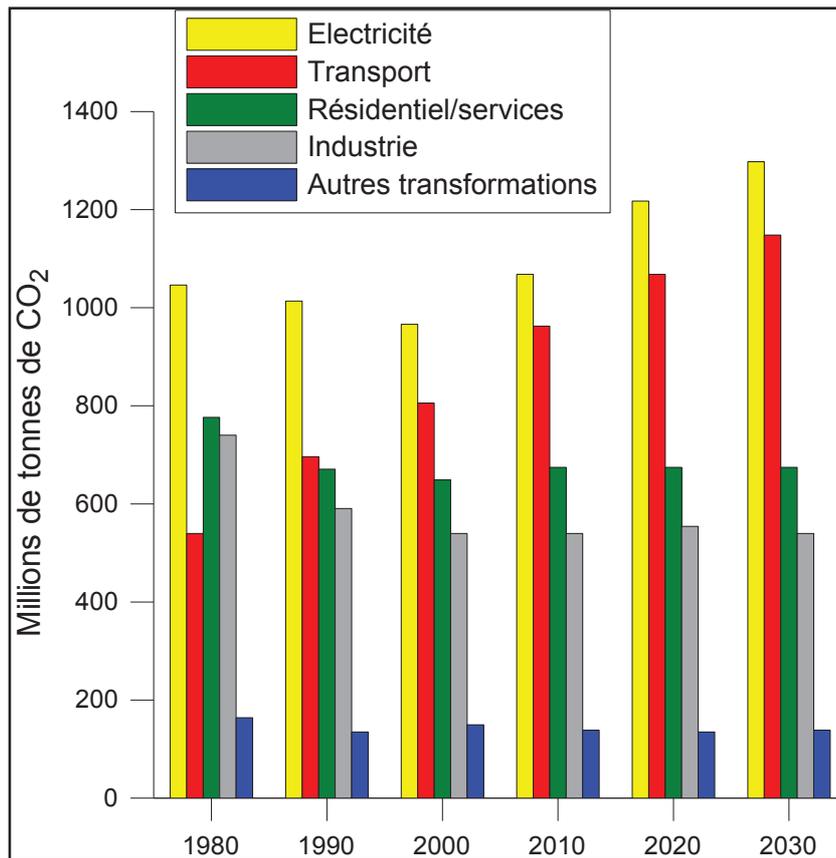
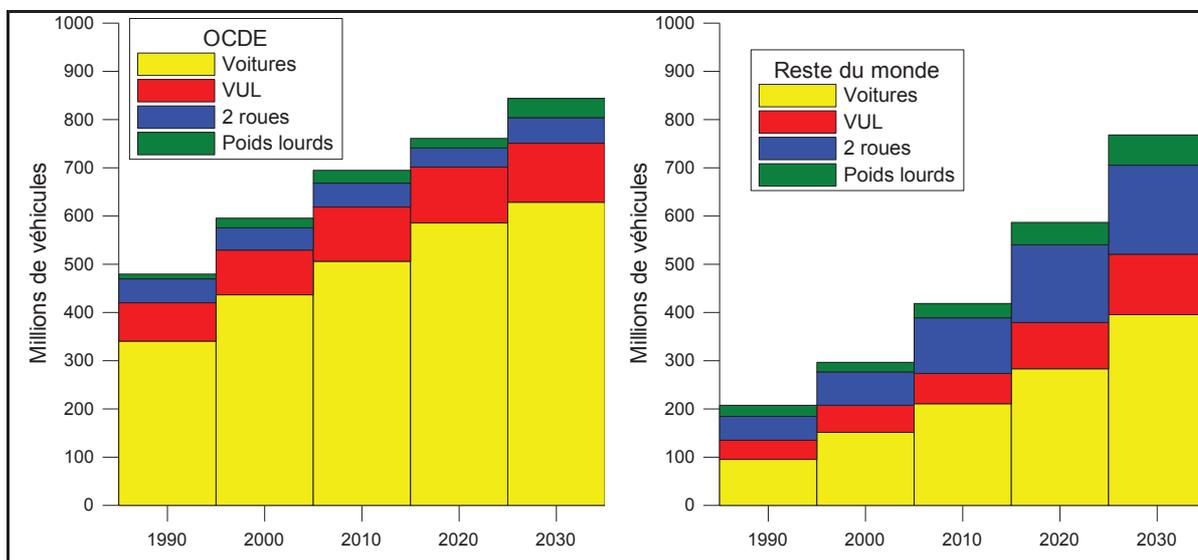


Figure I-2: Évolution des émissions de CO<sub>2</sub> en Europe entre 1980 et 2030  
Adaptée du site internet de l'Agence Internationale de l'Énergie (2011a)

Tableau I-1: Évolution des normes Euro sur les émissions de CO, HC, NO<sub>x</sub>, PM et NMHC pour les moteurs à allumage commandé (Source Renault)

| mg/km                 | Euro 1 | Euro 2 | Euro 3 | Euro 4 | Euro 5 | Euro 6 |
|-----------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| <b>CO</b>             | 2720   | 2200   | 2300   | 1000   | 1000   | 1000   |
| <b>HC</b>             | 970    | 500    | 200    | 100    | 100    | 100    |
| <b>NO<sub>x</sub></b> |        |        | 150    | 80     | 60     | 60     |
| <b>PM</b>             | -      | -      | -      | -      | 5      | 5      |
| <b>NMHC</b>           | -      | -      | -      | -      | 68     | 68     |

Pour Euro 1 et Euro 2, HC + NO<sub>x</sub>



VUL : Véhicules utilitaires légers

Figure I-3: Nombre de véhicules dans le parc automobile mondial entre 1990 et 2030  
Adaptée du site internet de l'IFP Énergies Nouvelles (2011a)

De plus, le secteur automobile est un gros émetteur d'autres polluants comme les NOx, les HC et le CO entre autres. On comprend mieux pourquoi il est devenu indispensable de se doter de normes, ce que l'Europe a réalisé en 1993 avec la norme Euro 1 sur les émissions de CO (Tableau I-1). Depuis cette époque, de nombreuses modifications y ont été apportées afin de les étendre à d'autres émissions polluantes, mais aussi les rendant plus contraignantes pour les constructeurs automobiles.

Pour répondre à la problématique de la pollution due au transport, mais aussi de la dépendance énergétique face au besoin en pétrole, il est nécessaire : d'une part, d'améliorer les systèmes de motorisation; d'autre part, de prospecter également de nouveaux carburants, pour se diversifier énergétiquement, et ainsi s'affranchir de la raréfaction du pétrole et gagner une indépendance énergétique. Une des solutions pour répondre à cette problématique est d'utiliser des biocarburants. Ce virage a déjà commencé à être pris par l'Union Européenne entre autre, dont la consommation des biocarburants dans les transports n'a cessé d'augmenter depuis les années 2000 (Figure I-4). Ceci a bien été aidé par les directives

2003/17/CE, puis 2009/28/CE du Parlement Européen (2009i), qui a imposé respectivement jusqu'à 5 %, puis 10 % d'éthanol dans l'essence.

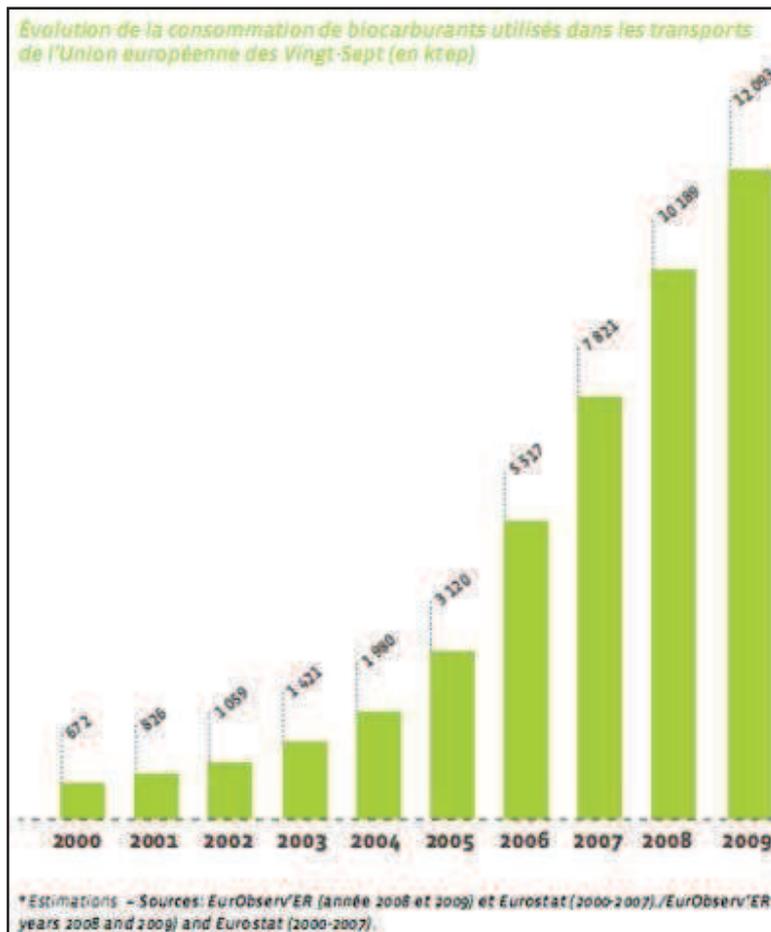


Figure I-4: Évolution de la consommation de biocarburants dans les transports de l'Union Européenne

Tirée du Journal des énergies renouvelables n° 204 p.74 (2011g)

En relation directe avec cette ligne conductrice de l'utilisation des biocarburants, l'objectif de ce travail de thèse est d'étudier et de mettre en évidence les avantages/inconvénients du butanol sur l'éthanol dans le cas d'une utilisation de type moteur à allumage commandé, en ce qui concerne les émissions polluantes et les performances.

Tout au long de cette étude, l'isooctane est utilisé comme hydrocarbure monocomposant prépondérant de l'essence, donc très proche au niveau des propriétés physiques, mais aussi pour évaluer les prédictions issues de schémas cinétiques d'oxydation et réaliser des expériences dans un moteur à accès optiques.

Durant cette étude, des mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol (0, 25, 50, 75 et 100% d'alcool en volume dans l'isooctane) ont été utilisés pour réaliser différents types d'essais :

- Dans un premier temps, les vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression initiale et de la richesse ont été mesurées dans une enceinte à volume constant. Ceci a permis de mettre en exergue les différences cinétiques des carburants. Puis, un nouveau schéma cinétique d'oxydation proposé par ICARE, rassemblant l'isooctane, l'éthanol et le butanol a été testé afin de le valider.
- Puis, dans un deuxième temps, la propagation de la combustion a été étudiée dans un moteur monocylindre à accès optiques en visualisation directe. Ceci a pour but de caractériser les carburants dans les conditions (thermodynamiques et aérodynamiques) d'un moteur dans le but de relier ces résultats aux vitesses de combustion laminaire.
- Enfin, dans une troisième phase, sur un moteur monocylindre à allumage commandé, les performances du moteur et les émissions de polluants réglementés ont été caractérisées. Car les différences entre les carburants rencontrées lors des deux premières études vont fortement impacter les réglages du moteur et le déroulement de la combustion, et alors se répercuter sur les émissions de polluants. Enfin, les polluants dit non-réglementés nocifs aussi pour la santé seront également analysés.

Ces phases pouvant se réaliser distinctement, il a été choisi de les présenter chacune dans un chapitre indépendant, avec systématiquement une étude bibliographique, une description des moyens expérimentaux, complétée par l'analyse des résultats et une conclusion. Ces chapitres sont en revanche groupés dans deux grandes parties : la première sur la caractérisation fondamentale de la combustion des alcools et la deuxième sur l'application dans des moteurs à allumage commandé. Enfin, une conclusion générale présente un résumé

des résultats et des avancées faites pendant ce travail de thèse, avant de proposer quelques perspectives.

Dans un premier temps, une présentation des alcools, de leurs propriétés et caractéristiques, est introduite afin de mieux appréhender la problématique globale.

## **CHAPITRE 1**

### **PRÉSENTATION DES ALCOOLS**

#### **1.1 Introduction**

Il est intéressant de connaître les grandes propriétés des carburants, car leur analyse va permettre de se donner une idée de leurs potentiels, voire de leurs inconvénients. Elles vont nous permettre d'expliquer pourquoi les carburants ont tels ou tels comportements lors de la combustion. Il faut donc apprendre à les connaître pour améliorer notre compréhension.

C'est pourquoi dans un premier temps, leur procédé de fabrication est brièvement expliqué, en particulier pour les alcools, puis leurs propriétés sont exposées. Par la suite, une étude comparative des carburants est réalisée, afin de les classer les uns par rapport aux autres, et d'envisager les possibles comportements de leur combustion. Enfin, des solutions technologiques existantes, permettant d'adapter les véhicules aux carburants alcoolisés, sont brièvement présentées.

Les principales propriétés des carburants, que nous étudions, sont répertoriées dans le Tableau 1-1.

Tableau 1-1: Principales propriétés des carburants

| <i>Propriétés</i>   |         | <b>1-Butanol</b>                 | <b>Ethanol</b>                   | <b>Iso-octane</b>              | <b>Essence</b>                 |
|---|---------|----------------------------------|----------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| Formule chimique  |         | C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> OH | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH | C <sub>8</sub> H <sub>18</sub> | C <sub>8</sub> H <sub>15</sub> |
| RON   |         | 96 (1)                           | 107 (6) à 111 (7)                | 100 (6)                        | 95 (9) (92 à 98 (6))           |
| MON   |         | 78 (1)                           | 89 (6) à 92 (7)                  | 100 (6)                        | 85 (9) (80 à 90 (6))           |
| Masse volumique à 0.1 MPa [kg.m <sup>-3</sup> ]   |         | 810 (2)                          | 785 (6) à 794 (7)                | 692 (6)                        | 715 (2) à 780 (6)              |
| Masse molaire [g/mol]   |         | 74.12 (3)                        | 46.07 (8)                        | 114.23 (6)                     | 102.5 (9) à 111.21 (3)         |
| PCI massique [MJ/kg]  |         | 33.1 (2)                         | 26.805 (9) à 28.9 (6)            | 44.3 (6) à 44.791 (11)         | 42.690 (9) à 44 (6)            |
| Pression de vapeur saturante [kPa]  | à 20 °C | 0.6 (4)                          | 5.8 (10) à 5.9 (8)               | 5.1 (12)                       | 60 à 90 (7) à 23.5 °C          |
|   | à 50 °C | 4.5 (4)                          | 29.3 (8)                         | -                              | -                              |
| Point de fusion [K]   |         | 183 (4) à 184 (4)                | 156 (10) à 159 (8)               | 166 (12)                       | -                              |
| Point éclair [K]  |         | 299 (4) à 308 (3)                | 281 (3) à 286 (8)                | 261 (12)                       | <294 (13)                      |
| Température d'ébullition à 0.1 MPa [K]  |         | 389 (4) à 391 (4)                | 351 (8) – 352 (10)               | 372 (12) 398.7 (11)            | 293 (13) à 480 [19]            |
| Température d'auto-inflammation [K]   |         | 613 à 653 (4), 618 (5)           | 636 (8), (10) 696-698 (8)        | 690 (12)                       | 523 (13) à 530 (3)             |
| Chaleur latente de vaporisation massique à la température d'ébullition et à 0.1 MPa [kJ/kg] |         | 582 (1) à 584.19 (3)             | 837.68 (3)                       | 300 (11)                       | 348.88 (3)                     |

| <i>Propriétés</i>  | <b>1-Butanol</b>                        | <b>Ethanol</b>             | <b>Iso-octane</b>       | <b>Essence</b>           |
|--|---|----------------------------|-------------------------|--------------------------|
| % massique de carbone  | 64.9                                    | 52.2                       | 84.2                    | 86.5                     |
| % massique d'hydrogène   | 13.5                                    | 13                         | 15.8                    | 13.5                     |
| % massique d'oxygène   | 21.6                                    | 34.8                       | 0.0                     | 0.0                      |
| PCO (Pouvoir comburivore)                                      | 11.12 (3)<br>à 11.2 (2)                 | 8.94 (3) à 9<br>(7)        | 15.13 (6)               | 14.51 (3) à<br>14.7 (14) |
| Limite inférieure d'explosivité<br>(en % volumique dans l'air) | 1.4 (1)                                 | 3.3 (8)                    | 1.1 (12)                | 1.4 (13)                 |
| Limite supérieure d'explosivité<br>(en % volumique dans l'air) | 11.2 (1) à<br>11.3 (4)                  | 19 (8)                     | 6.0 (12)                | 7.1 (13)                 |
| Solubilité à 25°C  | 74 à 80 g/L<br>à 20°C dans<br>l'eau (4) | Complète<br>dans l'eau (8) | Non<br>miscible<br>(12) | Non<br>miscible<br>(13)  |

Voici la liste des références qui ont permis la réalisation du Tableau 1-1 : (1) : Wallner et al. (2009l), (2) : Wallner *et al.* (2010k), (3) : Yacoub *et al.* (1998f), (4) : Bonnard *et al.* (2006b), (5) : Fiche de sécurité du 1-Butanol (1995a), (6) : Heywood (1988a), (7) : Alasfour (1998a), (8) : Bonnard *et al.* (2007b), (9) : Ballerini et Alazard-Toux (2006a), (10) : Fiche de sécurité de l'éthanol (2000a), (11) : Turns (1999c), (12) : Fiche de sécurité de l'isooctane (1993), (13) : Fiche de sécurité de l'essence (2001a), (14) : MacLean *et al.* (2003c).

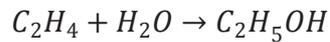
## **1.2 Éthanol**

### **1.2.1 Moyens de fabrications**

La production d'éthanol peut s'effectuer de différentes manières (Guibet (1997b)) :

- Par hydratation catalytique directe de l'éthylène.
- A partir de la biomasse.

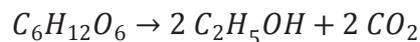
Tout d'abord, il existe la synthèse de l'éthanol par hydratation de l'éthylène, qui repose sur la réaction qui suit :



Ce type d'éthanol est d'origine pétrochimique et n'est pas utilisé dans la production de masse, qui est nécessaire pour alimenter en carburants les véhicules.

Il existe un autre procédé pour produire de l'éthanol, à partir de la biomasse, on parle alors de bioéthanol. En majorité, il vient du traitement des plantes sucrières (betterave, canne à sucre,...) ou des céréales, ou matières amylacées (maïs, blé,...). Mais il existe d'autres filières en particulier la production de bioéthanol cellulosique à partir des déchets végétaux (sciure de bois, paille de blé,...).

Le procédé, présenté sur la Figure 1-1, consiste à effectuer une fermentation à partir d'hexoses, selon la réaction suivante :



Ces hexoses sont obtenus à partir :

- Du saccharose en présence d'eau, pour les plantes sucrières.
- De l'hydrolyse de l'amidon, pour les matières amylacées.
- De l'hydrolyse de la cellulose, pour les matériaux lignocellulosiques.

Un jus fermentescible et des coproduits, qui vont être valorisés, sont alors obtenus. Après s'effectue la fermentation éthylique, en général en continu, en aérobiose partielle à 32-33°C en milieu acide à pH constant. Après avoir retiré les levures, le moult fermenté obtenu a une concentration en alcool de 6%. Ensuite, l'éthanol est séparé à l'aide d'une double distillation : une simple permettant de récupérer de l'éthanol à 95% et l'autre azéotrope permettant d'obtenir de l'éthanol pratiquement anhydre.

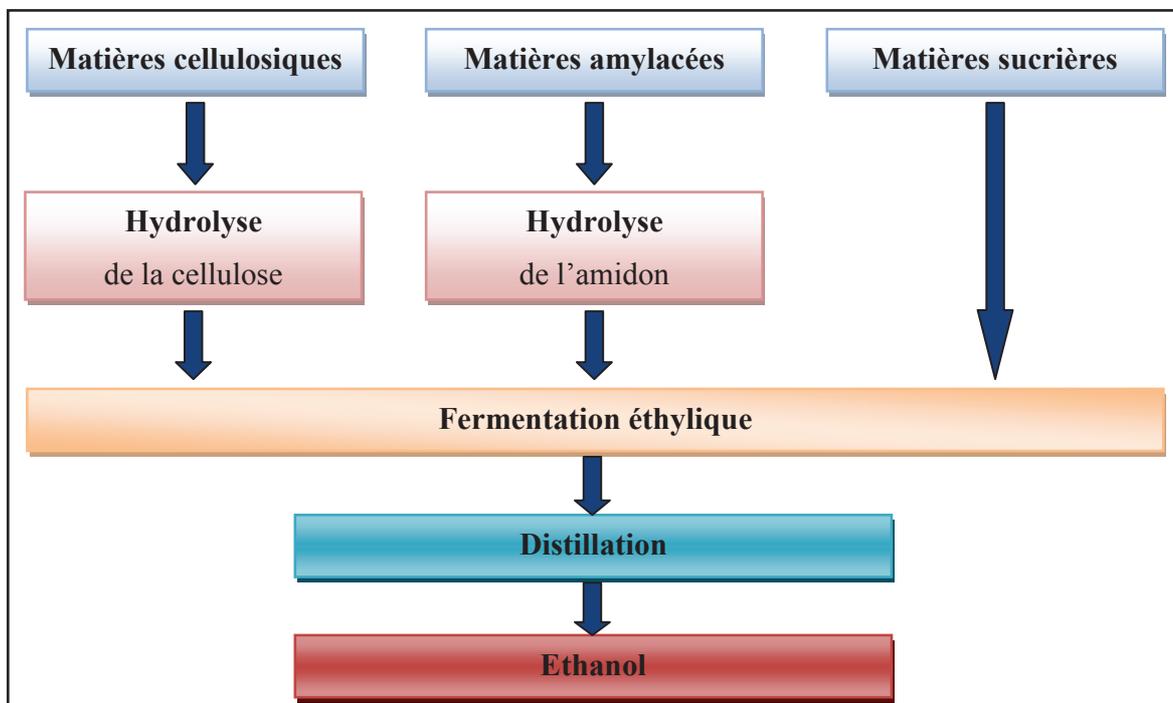


Figure 1-1: Les voies de fabrication de l'éthanol Guibet (1997b)

### 1.2.2 Propriétés

Les principales propriétés de l'éthanol sont consultables dans le Tableau 1-1.

Dans des conditions normales d'utilisation, l'éthanol est stable chimiquement. Il possède l'ensemble des propriétés des alcools primaires, c'est-à-dire, réactions d'oxydations, de déshydrogénation, de déshydratation et d'estérification (Bonnard *et al.* (2007b)).

D'après Ballerini et Alazard-Toux (2006a), la corrosion galvanique est caractérisée par le contact entre deux métaux, généralement augmenté par la présence d'un conducteur d'électrolytes. Les essences standard ont une conductivité électrique qui varie entre  $10^{-8}$  à  $10^{-6} \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ . Or, la conductivité électrique de l'éthanol est de  $1,35\cdot 10^{-3} \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ . De plus, l'éthanol peut s'oxyder en acide acétique, ce qui augmente fortement alors la conductivité électrique ( $42 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$  pour une solution de 0,1 mole d'acide acétique). La présence d'éthanol et donc d'acide acétique peut alors considérablement accroître la corrosion

galvanique et l'attaque chimique. Ces phénomènes sont fortement amplifiés avec l'eau. La réaction avec les métaux alcalins donne un éthylate avec un dégagement d'hydrogène. De plus, la réaction avec le magnésium et l'aluminium peuvent aussi former des éthylates.

D'autre part, l'éthanol provoque le gonflement des matériaux en caoutchouc et donc la diminution de leurs performances mécaniques, à cause de l'absorption d'éthanol par ces matériaux. Ceci peut entraîner des problèmes de fonctionnement et des fuites.

L'éthanol forme des azéotropes avec les hydrocarbures légers (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)), qui conduisent à un accroissement de la pression de la vapeur, du fait que les points d'ébullition des azéotropes sont plus faibles que ceux des hydrocarbures légers et de l'éthanol. Cependant, les nouvelles normes sur les carburants imposent une réduction des pressions de vapeur des essences de façon à réduire les pertes par évaporation. Le problème est que l'incorporation de l'éthanol dans l'essence s'oppose à cela. Pour respecter ces nouvelles normes, il serait alors nécessaire d'ajouter l'éthanol dans une essence à volatilité réduite ou dans une essence où les fractions légères responsables de ces azéotropes auront été supprimées. Ce phénomène n'existe naturellement pas lorsqu'on utilise de l'éthanol pur.

Dans les essences standards, de l'eau est présente, mais sans poser de graves problèmes (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). A température ambiante et en très faibles concentrations, l'eau reste complètement soluble dans l'essence. Mais en teneurs plus importantes, l'eau se sépare de l'essence et peut être éliminée.

Cependant, en présence d'éthanol, les traces d'eau peuvent provoquer une démixtion de l'éthanol engendrant une apparence trouble, en particulier à basse température. Cela peut conduire à la migration de l'éthanol vers le pied d'eau. On se retrouve alors avec un mélange biphasique composé d'une première phase éthanol/eau et d'une deuxième avec les hydrocarbures et une faible teneur en éthanol. Deux problèmes majeurs surgissent alors : un risque d'accroissement du volume de la couche aqueuse en fond de réservoirs des véhicules et un risque de réduction des indices d'octanes des mélanges concernés.

Les risques et dangers liés à l'utilisation de l'éthanol, comparativement à l'isooctane et l'essence sont développés en Annexe I.

### 1.3 Butanol

Le butanol a pour formule chimique :  $C_4H_9OH$ . En fait, le butanol est le nom de plusieurs alcools isomères de formule brute  $C_4H_{10}O$  :

- **Butan-1-ol** ou 1-butanol ou *n*-butanol, formule  $H_3C-(CH_2)_3-OH$  (Figure 1-2) :

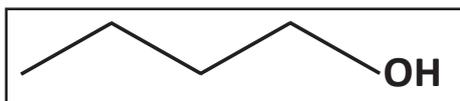


Figure 1-2: Représentation de la molécule de Butan-1-ol

- **Butan-2-ol** ou 2-butanol ou *sec*-butanol ou 1-méthylpropanol, formule  $H_3C-CH_2-CH(OH)-CH_3$  (Figure 1-3) :

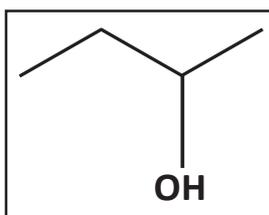


Figure 1-3: Représentation de la molécule de Butan-2-ol

- **Méthylpropan-1-ol** ou *isobutanol*, formule  $(H_3C)_2-CH-CH_2-OH$  (Figure 1-4) :

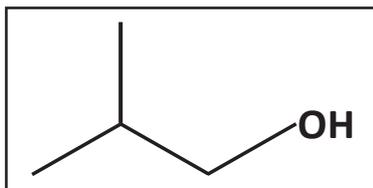


Figure 1-4: Représentation de la molécule du Méthylpropan-1-ol

- **2-Méthylpropan-2-ol** ou *tert*-butanol, formule  $(H_3C)_3-C-OH$  (Figure 1-5) :

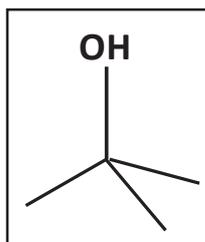


Figure 1-5: Représentation de la molécule du Méthylpropan-2-ol

En général, le butanol utilisé pour les expériences est du butan-1-ol et de l'isobutanol. Et dans les expériences que nous avons menées, nous avons utilisé du butan-1-ol. Nous avons ici cherché et répertorié les propriétés et les moyens de fabrication du butanol (au sens général) et du butan-1-ol. Les propriétés de l'isobutanol sont très semblables à celles du butanol, mais quelques différences apparaissent. Pour plus d'informations, on pourra consulter la fiche toxicologique de l'isobutanol émise par l'INRS (Bonnard *et al.* (2005a)). Dans la suite, le butanol signifiera le butan-1-ol.

### 1.3.1 Moyens de fabrication

D'après Jin *et al.* (2011i), depuis les années 50, la plupart du butanol, qui est produit commercialement, est fabriqué à partir des carburants fossiles. Le procédé le plus utilisé de nos jours est celui qui à partir du propylène crée du butanal, puis, ce dernier est réduit avec de l'hydrogène en butanol.

Cependant, il est aussi possible de produire du butanol par fermentation de la biomasse à l'aide de bactéries, de la même manière que pour l'éthanol : on parle de fermentation ABE (Acétone, Butanol et Éthanol). Dans ce type de fermentation, 6 molécules de butanol sont produites, pour 3 d'acétone et 1 d'éthanol. Avant les années 50, on utilisait en majorité la bactérie *Clostridium acetobutylicum* pour réaliser cette fermentation. Mais, depuis quelques dizaines d'années, des recherches ont montré que d'autres micro-organismes (comme le *Clostridium beijerinckii*) sont plus performants dans la production du butanol via la fermentation ABE et permettent alors de baisser le prix de production du butanol (Qureshi et Blaschek (2000e)).

Une multitude de matières premières conventionnelles comme le sucre de canne, le sucre de betterave, le maïs, le blé, le manioc et le sorgho peuvent être utilisés pour produire du butanol à partir de la biomasse comme pour l'éthanol (Hess (2006d)).

Le butanol peut être produit également à partir de l'éthanol (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). La réaction de transformation comprend de multiples étapes :

- la déshydrogénation catalytique de l'éthanol en aldéhyde,
- la condensation d'aldol (composé qui contient un groupe aldéhyde et un groupe alcool) à partir de deux molécules d'aldéhydes, enchaînée par une déshydratation, ce qui forme un aldéhyde  $\alpha,\beta$ -insaturé,
- et enfin l'hydrogénation du produit de condensation, pour donner le butanol.

Cependant, cette réaction nécessite un catalyseur de type alcalin comme la potasse, dopé par un métal de transition (Rh, Pd, Cu, Ni, Ir,...). Cette réaction se produit à fortes pression et température.

De plus, les scientifiques de DuPont (Hess (2006d)), associés à BP et British Sugar, sont en train de développer un microbe génétiquement modifié, comme un catalyseur pour accélérer de manière significative le taux de conversion dans le procédé de transformation des matières premières en carburant. Ceci permettrait d'augmenter le rendement et la concentration de butanol obtenus dans l'unité de fermentation. Ils ont, par la même occasion, modifié une usine de production d'éthanol par fermentation afin de l'adapter à la production de butanol.

### 1.3.2 Propriétés

Les principales propriétés du butanol sont consultables dans le Tableau 1-1.

D'après la fiche INRS du butan-1-ol (Bonnard *et al.* (2006b)), dans des conditions normales d'utilisation, le butanol est stable, tout comme l'éthanol et possède les mêmes propriétés des alcools primaires.

L'oxydation du butanol donne tout d'abord de l'aldéhyde butyrique, qui est le produit principal de la réaction avec l'air et l'oxygène à haute température. Il donne ensuite un mélange d'acides, et plus particulièrement de l'acide butyrique.

La majorité des métaux sont insensibles à l'action du butanol. Cependant, sous certaines conditions, il peut réagir avec l'aluminium pour former de l'hydrogène. De plus, il attaque certains plastiques et le caoutchouc (Fiche de sécurité du n-butanol (1995a)).

Les risques et dangers liés à l'utilisation du butanol, comparativement à l'isooctane et l'essence sont développés en Annexe I.

#### **1.4 Étude comparative des propriétés des carburants**

Tout d'abord, d'après le Tableau 1-1, l'essence et l'isooctane ont un pouvoir calorifique inférieur (PCI) ou un contenu énergétique supérieur aux alcools. Il y aura nécessairement une surconsommation de carburant en termes de volume de carburant au 100 km avec l'utilisation des alcools par rapport à l'essence et l'isooctane. Mais, les deux alcools ont moins de carbones et un atome d'oxygène. Ceci implique que pour brûler une molécule d'éthanol ou de butanol, on a besoin de moins d'air que pour nos deux hydrocarbures, d'où le fait que le rapport stœchiométrique soit plus faible pour l'éthanol et le butanol. Cependant, la présence d'oxygène dans les alcools peut favoriser la combustion et donc diminuer les émissions d'hydrocarbures imbrûlés ou de produits d'oxydation partielle (HC, CO). On notera que le butanol tend à se rapprocher de l'essence et de l'isooctane en termes de pouvoir calorifique et de rapport stœchiométrique.

La température d'auto-inflammation est plus élevée pour les alcools que pour l'essence, mais inférieure à celle de l'isooctane, donc le risque d'auto-inflammation ou de cliquetis (combustion anormale) est diminué vis-à-vis de l'essence. Cependant, même si les températures d'ébullition des alcools sont similaires à celles de nos hydrocarbures de références, les enthalpies de vaporisation sont plus élevées pour les alcools. Ceci se traduit par des difficultés à démarrer un moteur fonctionnant avec 100% d'éthanol dès que la température est inférieure à 15°C. En revanche, l'enthalpie de vaporisation du butanol est plus faible que celle de l'éthanol, mais il a une température d'ébullition un peu plus forte,

donc il est possible que le démarrage soit facilité à ce niveau en utilisant du butanol. Cependant, avoir une enthalpie de vaporisation élevée pour les alcools permet d'avoir ce que l'on appelle le « cooling effect » avec pour effet d'améliorer l'efficacité du remplissage de la chambre de combustion (Jeuland *et al.* (2004d)) en particulier en moteur IDE (injection directe essence). Mais cela permet aussi de baisser les températures dans la chambre de combustion, ce qui peut entraîner une baisse des émissions de NOx (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)).

Il faut certes vaporiser le carburant pour qu'il puisse être brûlé, mais il ne faut pas que le pourcentage de carburant présent dans l'air ne soit ni inférieur à la limite inférieure d'inflammabilité, ni supérieur à la limite supérieure d'inflammabilité, auquel cas la combustion ne se fera pas. En richesse, les limites inférieures sont plus faibles pour les alcools que pour les références, donc on pourra brûler des mélanges plus pauvres. En ce qui concerne les limites supérieures, les deux hydrocarbures sont légèrement supérieurs aux alcools. Mais, ceci est moins important, car on brûlera souvent à la stœchiométrie ou en mélange pauvre, donc les limites inférieures sont plus intéressantes pour nous et montrent l'avantage qu'ont les alcools. Entre les deux alcools, c'est l'éthanol qui a la plage d'inflammabilité la plus large avec une limite basse plus faible et une limite haute plus élevée.

Si on compare maintenant les tensions de vapeur, on remarque que les tensions de vapeur de l'essence sont très supérieures à celles de l'éthanol et elles-mêmes très supérieures à celles du butanol. Or, si la pression partielle du carburant dépasse la pression de vapeur, on va avoir liquéfaction du carburant, ce qui n'est absolument pas recherché. Le problème avec les alcools et en particulier avec le butanol est que leurs tensions de vapeurs sont vraiment très faibles, donc le risque de condensation du carburant dans la chambre de combustion est important.

Au final, on constate que le butanol a des caractéristiques physico-chimiques très intéressantes par rapport à l'éthanol, entre autre une enthalpie de vaporisation plus faible et

un PCI plus important. Ceci explique pourquoi nous nous sommes intéressés à ce carburant en mélange dans les hydrocarbures en comparaison avec l'éthanol.

## **1.5 Des solutions technologiques**

Nous avons vu qu'avec certains matériaux, les alcools pouvaient réagir (avec l'aluminium par exemple). Il va donc falloir dans certains cas modifier quelque peu, des pièces d'une voiture pour qu'elle puisse accepter les alcools. C'est ce qui est fait pour les véhicules dits « Flex-Fuel ».

Dans le cas du moteur en lui-même, le problème majeur est que l'aluminium est l'un des matériaux utilisés pour sa conception. Jusqu'à 10% d'éthanol dans le mélange essence/éthanol, le fonctionnement du moteur est peu affecté. Jusqu'à 30%, seul des réglages spécifiques sont nécessaires pour adapter le moteur. Au-delà, il devient nécessaire de modifier quelques pièces du moteur, car la corrosion galvanique et l'attaque chimique peuvent être très importante à cause de l'éthanol et d'un oxyde l'acide acétique (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). Il est alors recommandé d'utiliser de l'acier type « carbon steel », de l'acier inoxydable et du bronze pour la conception du moteur. En revanche les métaux comme le magnésium, le zinc, le laiton et le cuivre sont proscrits. L'utilisation de pistons graphités, de soupapes niturés et de sièges de soupapes renforcés est également possible. L'attaque chimique et la corrosion galvanique étant amplifiées en présence d'eau, il est donc nécessaire d'utiliser de l'éthanol anhydre (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). Ces problèmes sont le plus gros frein actuellement au développement de l'éthanol.

De plus, l'éthanol a un très faible PCI, ce qui nécessite, afin d'injecter la même quantité d'énergie dans le moteur comparativement à de l'essence, qu'il faut augmenter la quantité d'éthanol à injecter ce qui entraîne donc une consommation de carburant plus élevée. Enfin, un calculateur moteur devra être installé avec un capteur, pour reconnaître le carburant et estimer le taux d'alcool, effectuer la gestion de la richesse, de l'avance à l'allumage, des

quantités à injecter en fonction du taux d'alcool, des démarrages à froid et de la dépollution (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)).

Enfin, le circuit est composé de nombreux caoutchoucs. Or, l'éthanol provoque le gonflement et la réduction des performances mécaniques des composants en caoutchouc, car ce dernier absorbe le carburant, ce qui peut conduire à des incidents de fonctionnement et à des fuites (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). En utilisant des matériaux compatibles comme les caoutchoucs à haute teneur en fluor (Viton), il est alors possible de remédier à ce problème. Il est à noter que le nylon peut aussi être très résistant, mais seulement à basses températures ( $<30^{\circ}\text{C}$ ).

Les alcools en tant que carburants permettent très difficilement un démarrage à froid, à cause d'une température d'ébullition et d'une enthalpie de vaporisation élevées ainsi que d'une faible volatilité pour l'éthanol pur (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). Dans le cas de l'éthanol, l'une des solutions pour minimiser ce problème est d'utiliser un mélange de 85%<sub>vol</sub> d'éthanol et 15%<sub>vol</sub> d'essence au lieu de l'éthanol pur. Cet apport d'essence va permettre d'augmenter la volatilité, et donc de faciliter le démarrage à froid. Une autre technique est utilisée au Brésil. Elle utilise un système de chauffage du système d'injection et en particulier de la rampe d'injection. Ajouté à cela, elle utilise un autre réservoir, d'une capacité d'1L, contenant une essence standard, qui est très volatile, pour démarrer le moteur pendant quelques secondes avant de passer à un fonctionnement à l'éthanol.

Le problème de démixtion de l'éthanol avec l'essence en présence d'eau peut être réglé soit en utilisant un solvant (le TBA) ou soit en contrôlant les conditions de stockages qui doivent préserver les mélanges essence/éthanol de l'humidité (Ballerini et Alazard-Toux (2006a)). Dans les cas d'utilisation d'éthanol en forte concentration, ce phénomène de démixtion disparaît complètement, car l'eau est totalement miscible à l'alcool.

Pour le moment, d'un point de vue technique, l'utilisation de l'éthanol est assez problématique, puisqu'il est nécessaire d'apporter de nombreuses modifications au moteur,

ainsi qu'à tout le système de tuyauterie. De plus, ces propriétés physico-chimiques contraignantes ont amené les constructeurs de véhicules « Flex-Fuel » à des adaptations importantes. L'avantage du butanol sur l'éthanol apparaît déjà à ce niveau, puisque ces propriétés physico-chimiques sont plus intéressantes, et qu'il va induire moins de modifications sur le véhicule.

## **PARTIE I**

### **CARACTÉRISATION FONDAMENTALE DE LA COMBUSTION DES ALCOOLS**

**CHAPITRE 2 : DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DES VITESSES DE  
COMBUSTION LAMINAIRE POUR DES MÉLANGES ISOCTANE/ALCOOLS**

**CHAPITRE 3 : ÉTUDE NUMÉRIQUE SUR LES VITESSES DE COMBUSTION  
LAMINAIRE**



Afin de caractériser le potentiel de l'ajout de butanol dans l'isooctane dans un moteur à allumage commandé, comparativement à l'ajout d'éthanol, il faut tout d'abord s'intéresser à la cinétique chimique d'oxydation des carburants. En effet, la vitesse de combustion laminaire, qui est une des caractéristiques de l'oxydation d'un carburant, est aussi un paramètre clé du dégagement de chaleur dans un moteur à allumage commandé. C'est pourquoi, dans un premier temps, nous allons présenter les résultats de vitesses de combustion laminaire obtenus pour des mélanges isooctane/alcools à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa et sur une plage de richesse allant de 0.7 à 1.4.

Par la suite, des simulations, à l'aide du code de calcul Cantera et d'un schéma cinétique d'oxydation du mélange isooctane/éthanol/butanol, développé par P. Dagaut (ICARE), sont présentées. Elles sont réalisées pour des mélanges isooctane/alcools à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa et sur une plage de richesse allant de 0.6 à 1.4, et comparées aux données expérimentales présentées dans le chapitre précédent.



## CHAPITRE 2

### DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE POUR DES MÉLANGES ISOCTANE/ALCOOLS

#### 2.1 Introduction

Dans un premier temps, un rappel de la théorie de la combustion laminaire de prémélange est présenté. Puis, un état de l'art sur les différentes corrélations permettant de prédire les vitesses de combustion laminaire pour les trois carburants purs étudiés est présenté afin de les confronter aux résultats expérimentaux obtenus durant ce travail. Les résultats obtenus dans une enceinte sphérique à volume constante sont ensuite présentés et analysés. Enfin, une corrélation sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression et de la concentration en alcool est proposée.

#### 2.2 Rappels sur les flammes laminaires de prémélange

Dans cette première partie, la combustion laminaire de prémélange est brièvement introduite. Les grandeurs caractéristiques de ce type de flamme, ainsi que les instabilités auxquelles elle est soumise, sont présentées.

##### 2.2.1 Combustion laminaire de prémélange

La combustion laminaire de prémélange est le siège de nombreux phénomènes interagissant entre eux tels que les transferts de masse et de chaleur, la thermochimie et la thermodynamique. Le schéma de la propagation d'une flamme plane laminaire prémélangée est présenté sur la Figure 2-1. Les gaz frais (ayant une température  $T_u$  et une masse volumique  $\rho_u$ ) et les gaz brûlés (ayant une température  $T_b$  et une masse volumique  $\rho_b$ ) sont séparés par une mince zone de réaction (le front de flamme). Les transferts de chaleur, en particulier la diffusion thermique, ont ici un rôle important, puisque le front de flamme

chauffe les gaz frais. Dès que les gaz frais ont atteint la température critique d'auto-inflammation  $T_i$ , les gaz frais s'enflamment et sont le siège de réactions globalement exothermiques. Le front de flamme se propage de proche en proche vers les gaz frais. La vitesse  $S_L$  de combustion caractérise la vitesse à laquelle l'interface, séparant les gaz frais des gaz brûlés, se déplacent. Elle dépend de nombreux paramètres comme la nature du mélange (carburant, richesse, dilution), la pression et la température des gaz frais,....

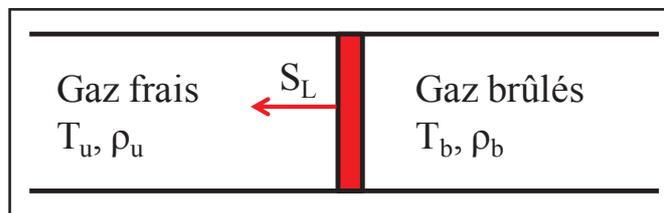


Figure 2-1 : Propagation d'une flamme plane laminaire prémélangée

Il existe deux principales caractéristiques pour une flamme laminaire prémélangée :

- La vitesse de propagation laminaire, qui représente la vitesse de consommation des gaz frais par le front de flamme. Il faut noter que cette vitesse peut subir des modifications à cause de l'étirement du front de flamme. C'est pourquoi il est important de définir une vitesse de combustion laminaire non-étirée  $S_L^0$ .
- L'épaisseur de flamme est l'autre paramètre important qui permet de définir la structure du front de flamme.

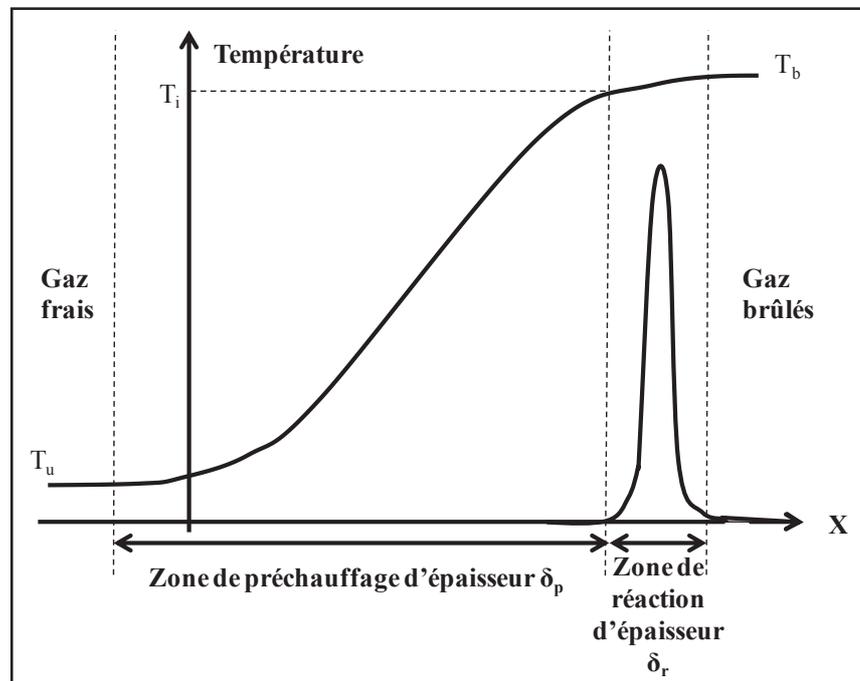


Figure 2-2: Structure d'une flamme plane laminaire prémélangée

Dans leur théorie qui repose sur l'hypothèse d'auto-inflammation du mélange gaz frais de proche en proche, Mallard et le Chatelier (1883) supposent que la flamme, qui est la zone présentant un gradient de température, est divisée en deux parties distinctes (Figure 2-2) :

- Une zone de préchauffage d'épaisseur  $\delta_p$  : zone dans laquelle les phénomènes de diffusion sont les processus prédominants et où les réactions chimiques sont négligeables.
- Une zone de réaction d'épaisseur  $\delta_r$  : zone d'épaisseur très mince dans laquelle se fait le dégagement de chaleur, dû aux réactions chimiques.

Au final, le front de flamme laminaire est caractérisé par la somme des épaisseurs de la zone de réaction et de celle de préchauffage :

$$\delta_L = \delta_r + \delta_p \quad (2.1)$$

La définition, la plus couramment employée, pour caractériser l'épaisseur de flamme est celle donnée par Zeldovich. Elle est obtenue en faisant l'hypothèse que la totalité de l'énergie

produite par la combustion sert à élever la température des gaz frais présent dans la zone de préchauffage :

$$\delta_L = \frac{\lambda}{C_p \cdot \rho_u \cdot S_L^0} \quad (2.2)$$

Avec  $\lambda$  la conductivité thermique du mélange réactif,  $C_p$  la chaleur spécifique à pression constante et  $\rho_u$  la masse volumique des gaz frais.

### 2.2.2 Instabilités du front de flamme

Les flammes de prémélange sont sensibles aux instabilités qui peuvent contribuer à la déformation des zones réactives. En effet, au niveau du front de flamme, les gaz sont soumis à de fortes perturbations de concentration ou de température, qui peuvent entraîner une modification locale de l'équilibre entre la convection et la diffusion. Ceci provoque le déplacement et la déformation du front de flamme vers une nouvelle position d'équilibre, qui peut être stable ou instable selon les phénomènes impliqués.

#### 2.2.2.1 Instabilités dues aux forces de gravité

Cette instabilité apparait lorsque deux gaz de masses volumiques différentes sont superposés. En effet, si le gaz le plus chaud (donc ayant la plus faible densité) se trouve en-dessous du gaz plus froid (on considère ici une flamme se propageant vers le haut), le front de flamme sera alors soumis aux effets de la gravité et donc à des instabilités. Il faut préciser que dans notre étude, ces instabilités ne seront pas prises en compte, car elles sont négligeables dans le cas des moteurs à combustion interne.

#### 2.2.2.2 Instabilités hydrodynamiques

Une des caractéristiques du front de flamme est la variation brutale de la masse volumique entre les gaz frais,  $\rho_u$ , et les gaz brûlés,  $\rho_b$ . Lors de la traversée du front de flamme, la vitesse normale du gaz augmente d'un facteur  $\rho_u/\rho_b$  (appelé facteur d'expansion thermique), à cause

du fort gradient de température. Darrieus (1945) et Landau (1944) ont été les premiers à étudier la réponse du front de flamme à des perturbations de faibles amplitudes. Ils ont montré qu'une flamme plane de prémélange, se propageant à une vitesse de combustion non-étirée laminaire  $S_L^0$ , était intrinsèquement instable.

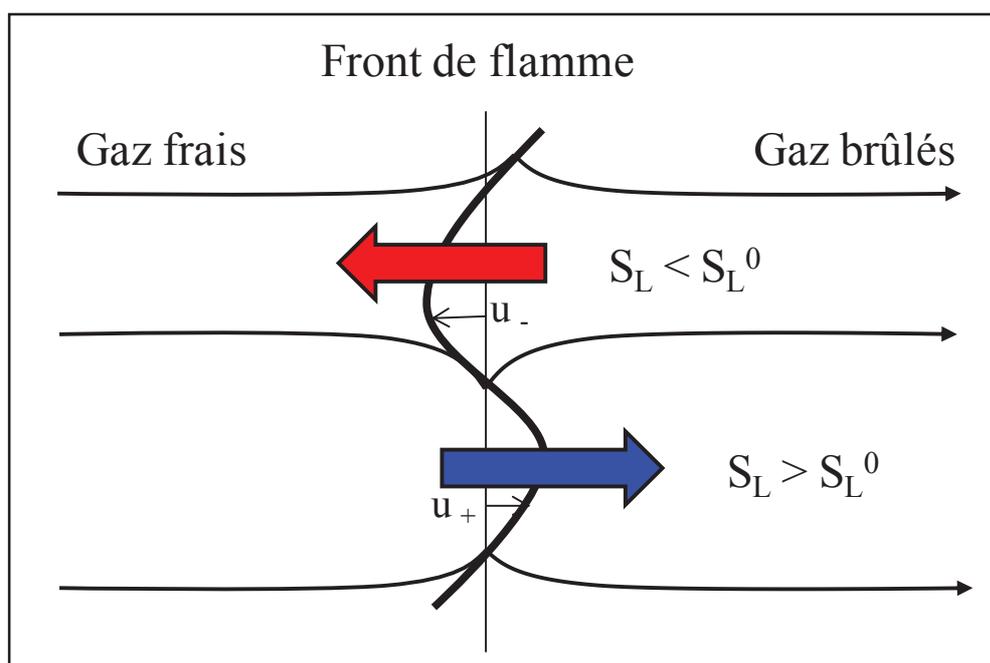


Figure 2-3: Instabilités hydrodynamiques d'un front de flamme laminaire

Considérant une flamme parfaitement plane et fixe, avec une vitesse de combustion des gaz frais  $S_L^0$ , si une perturbation vient déplacer le front de flamme vers les gaz brûlés, la vitesse de gaz imbrûlés augmente de  $u_+$ . Afin de maintenir la conservation de la masse et de la quantité de mouvement, les lignes de courant convergent. La vitesse des gaz imbrûlés  $S_L$  augmente et devient supérieure à  $S_L^0$ , ce qui tend encore plus à déplacer le front de flamme vers les gaz brûlés et à l'accélérer. Il en est de même lorsque la perturbation vient déplacer le front de flamme vers les gaz imbrûlés, les lignes de courant alors divergent. Et la vitesse de gaz imbrûlés  $S_L$  diminue et devient inférieure à  $S_L^0$ . Donc le front de flamme se déplace encore vers les gaz imbrûlés. Une flamme de prémélange est donc naturellement instable et les plissements augmentent continuellement.

### 2.2.2.3 Instabilités thermodiffusives

Ces instabilités ont pour origine le développement de flux diffusifs dans la direction tangente au front de flamme. Tout d'abord, l'étude de ces instabilités a été réalisée en négligeant les instabilités hydrodynamiques (Joulin et Clavin (1979)). Puis en considérant que la zone de réaction a une épaisseur non-négligeable, la flamme de prémélange plissée est gouvernée par des effets diffusifs : la diffusion de masse d'espèces réactives, représentée par le coefficient de diffusion moléculaire  $D_m$ , et la diffusion thermique, représentée par le coefficient de diffusion thermique  $D_{th}$ . Ce phénomène est représenté sur la Figure 2-4. Dans cette configuration il se produit transversalement aux zones réactives des phénomènes de diffusion de masse et de chaleur dans des directions opposées. Ainsi dans la zone I, la diffusion de chaleur tend à diminuer la température des gaz et donc ralentir la propagation de la flamme, tandis que la diffusion de masse augmente et amène des espèces réactives permettant de l'accélérer. Le processus inverse est observé dans la zone II.

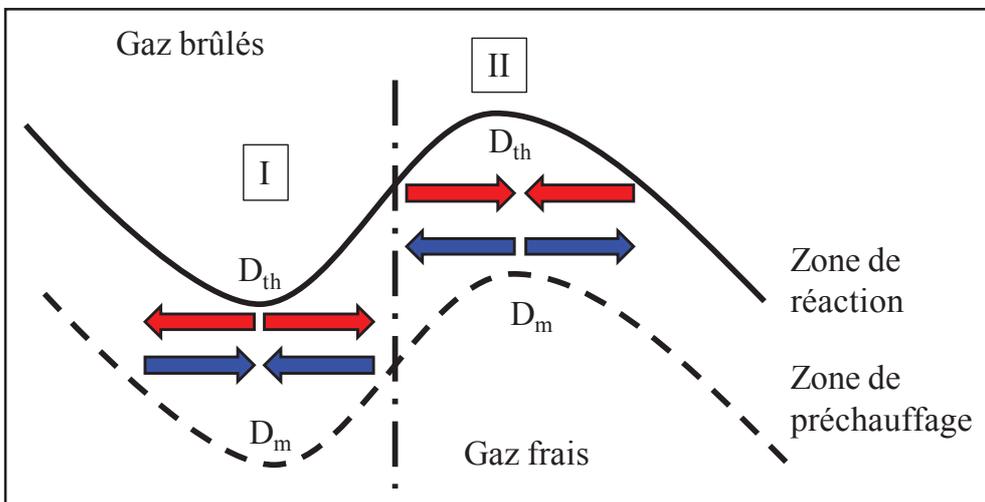


Figure 2-4: Instabilités thermodiffusives d'un front de flamme laminaire

La compétition entre ces phénomènes de diffusion est caractérisée par le nombre de Lewis  $Le$ , qui est associé à l'espèce réactive minoritaire ( $D_m$ ), le carburant ou l'oxygène :

$$Le = \left[ \frac{\lambda}{\rho \cdot C_p} \right]_u \cdot \frac{1}{D_m} = \frac{D_{th}}{D_m} \quad (2.3)$$

Ce nombre permet de mieux comprendre quel est l'effet prépondérant sur la stabilité du front de flamme.

Ainsi :

- Si le nombre de Lewis est inférieur à 1, la diffusion de masse est prépondérante sur la diffusion thermique. Dans la zone I, de plus en plus d'espèces réactives seront présentes. Ceci va augmenter la consommation des réactifs et donc de la vitesse de propagation de la flamme, ce qui augmente le plissement vers les gaz frais. Dans le même temps, dans la zone II, les espèces réactives vont se raréfier. Alors la vitesse de combustion diminue plissant la flamme vers les gaz brûlés. En conséquence, l'amplitude du plissement de la flamme augmente, ce qui déstabilise la flamme et la rend instable. Ceci amène à la création de cellules sur le front de flamme de plus en plus grandes, qui la font s'accélérer.
- Si le nombre de Lewis est supérieur à 1, la diffusion thermique est prépondérante sur la diffusion de masse. Dans la zone I, la chaleur est diffusée de la zone de réaction vers les gaz frais, ce qui ralentit la vitesse de flamme. Dans la zone II, de la chaleur est apportée des gaz brûlés vers la zone de réaction, ce qui accélère la vitesse de flamme. Au final, il y a une stabilisation du front de flamme.
- Si le nombre de Lewis est égal à 1, les deux phénomènes de diffusion se compensent, ce qui a pour effet de stabiliser le front de flamme, et donc de maintenir constante la vitesse de flamme.

### 2.2.3 Théorie

Un bref rappel théorique est effectué ici afin d'illustrer le lien entre étirement et vitesse de flamme laminaire. Dans un premier temps, la problématique est résolue pour les gaz brûlés et dans un second temps, elle sera résolue pour les gaz frais.

### 2.2.3.1 Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés

Le développement qui suit permettra l'introduction de la longueur de Markstein du côté des gaz brûlés qui permet à son tour, de déterminer la vitesse de propagation non-étirée des gaz brûlé. Ce développement permettra d'illustrer d'où proviennent les équations utilisées lors du post-traitement des données expérimentales obtenues.

Tout d'abord, on étudie le cas d'un développement de flamme sphérique avec les hypothèses suivantes:

- Un état quasi-stationnaire, sauf pour l'évolution du rayon.
- La flamme est adiabatique et isobare
- Une réaction exothermique à une seule étape, a une grande énergie d'activation.
- Le rayon de la flamme est grand devant l'épaisseur de la flamme.
- La vitesse des gaz brûlés est nulle.
- Les propriétés thermiques sont constantes et la loi des gaz parfaits s'applique.
- Les transferts radiatifs et l'énergie d'allumage sont négligés.

D'après Chen et Ju (2007d) et à l'aide des hypothèses ci-dessus, les équations de conservation de l'énergie et des espèces, sous-forme adimensionnelle, sont respectivement :

$$-U \frac{d\tilde{T}}{dr} = \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left( r^2 \frac{d\tilde{T}}{dr} \right) + \omega \quad (2.4)$$

$$-U \frac{d\tilde{Y}}{dr} = \frac{Le^{-1}}{r^2} \frac{d}{dr} \left( r^2 \frac{d\tilde{Y}}{dr} \right) - \omega \quad (2.5)$$

Où les nombres adimensionnés suivants sont définis :

$$U = \frac{S_b}{S_b^0}, \tilde{Y} = \frac{Y}{Y_\infty}, \tilde{T} = \frac{T - T_\infty}{T_{ad} - T_\infty}, \tilde{R} = \frac{R_f}{\delta_L}, \sigma = \frac{T_\infty}{T_{ad}}$$

avec  $R_f$  le rayon de la flamme,  $S_b$  et  $S_b^0$  sont la vitesse de propagation des gaz brûlés étirée et non-étirée, respectivement, et  $E_a$  est l'énergie d'activation. Le taux de réaction,  $\omega$  est défini comme suit :

$$\omega(r) = \exp\left[\frac{Ze}{2} \frac{\tilde{T}_f - 1}{\sigma + (1 - \sigma)\tilde{T}_f}\right] \cdot \delta(r - \tilde{R}) \quad (2.6)$$

Où le nombre de Zel'dovich,  $Ze$ , s'exprime à l'aide de l'équation 2.7 alors que  $\delta$ , correspond à la fonction de distribution de Dirac.

$$Ze = \frac{E_a \cdot (1 - \sigma)}{R \cdot T_{ad}} \quad (2.7)$$

A partir de ces équations, la relation de saut à l'interface de la flamme est utilisée et s'exprime par l'Équation 2.8:

$$\left. \frac{d\tilde{T}}{dr} \right|_{R^-} - \left. \frac{d\tilde{T}}{dr} \right|_{R^+} = \frac{1}{Le} \left( \left. \frac{d\tilde{Y}}{dr} \right|_{R^+} - \left. \frac{d\tilde{Y}}{dr} \right|_{R^-} \right) = \exp\left(\frac{Ze}{2} \frac{\tilde{T}_f - 1}{\sigma + (1 - \sigma)\tilde{T}_f}\right) \quad (2.8)$$

À laquelle s'ajoutent les trois conditions aux limites suivantes qui sont imposées aux Équations 2.4 et 2.5:

$$\text{À } r = 0, \quad r^2 \frac{d\tilde{T}}{dr} = -Q = 0 \text{ et } \tilde{Y} = 0 \quad (2.9)$$

$$\text{À } r = R, \quad \tilde{T} = \tilde{T}_f \text{ et } \tilde{Y} = 0 \quad (2.10)$$

$$\text{À } r = 0, \quad \tilde{T} = 0 \text{ et } \tilde{Y} = 1 \quad (2.11)$$

La solution obtenue est l'Équation 2.12:

$$\tilde{T}_f V = V + \frac{2}{R} \left( \frac{1}{Le} - 1 \right) = \exp\left[\frac{Ze}{2} \frac{\tilde{T}_f - 1}{\sigma + (1 - \sigma)\tilde{T}_f}\right] \quad (2.12)$$

Avec  $V = U + \frac{2}{R}$

Après quelques transformations, on arrive à la formulation proposée par Chen et Ju (2007d) et Frankel et Sivashinsky (1984a) :

$$V \cdot \ln(V) = \frac{Ze}{\tilde{R}} \left( \frac{1}{Le} - 1 \right) \quad (2.13)$$

Comme  $\tilde{R}$  est très grand devant 2,  $V \approx U$ , et une formulation simplifiée, proposée par Frankel et Sivashinsky (1984a), est alors trouvée et permet d'introduire la longueur de Markstein du côté des gaz brûlés  $L_b$  :

$$U \cdot \ln(U) = \frac{Ze}{\tilde{R}} \left( \frac{1}{Le} - 1 \right) = -2 \cdot \frac{L_b}{\tilde{R} \cdot \delta_L} \quad (2.14)$$

Avec :

$$L_b = \frac{Ze}{2} \left( 1 - \frac{1}{Le} \right) \cdot \delta_L \quad (2.15)$$

Dans le cas d'une propagation sphérique de flamme, la vitesse de propagation de flamme étirée des gaz brûlés  $S_b$  provient de la dérivée du rayon de la flamme  $R_f$  par rapport au temps :

$$S_b = \frac{dR_f}{dt} \quad (2.16)$$

Le taux d'étirement de la flamme  $K$ , quant à lui, provient de la dérivée temporelle de l'aire,  $A$ , de la flamme :

$$K = \frac{dA}{A \cdot dt} \quad (2.17)$$

Comme dans ce cas, la propagation de la flamme est considérée sphérique, le taux d'étirement  $K$ , en fonction du rayon de la flamme  $R_f$  peut s'écrire ainsi (Law et Sung (2000d)) :

$$K = \frac{2}{R_f} \cdot \frac{dR_f}{dt} \quad (2.18)$$

On définit, par la suite, le nombre de Karlovitz,  $Ka$ , comme suit :

$$Ka = \frac{\delta_L}{S_L^0} \cdot K = \frac{2}{\sigma} \cdot \frac{U}{\bar{R}} \quad (2.19)$$

Avec  $S_L^0$ , la vitesse de combustion laminaire non-étirée.

En insérant les Équation 2.15 et 2.19 dans l'Équation 2.14, on obtient alors la formulation non-linéaire, proposée à l'origine par Sivashinsky (1977b) et Buckmaster (1977a), permettant de lier les vitesses de propagation étirée et non-étirée à l'étirement de la flamme :

$$U^2 \cdot \ln(U^2) = \left(\frac{S_b}{S_b^0}\right)^2 \cdot \ln\left(\left(\frac{S_b}{S_b^0}\right)^2\right) = 2 \cdot Ka \cdot Ma = -\frac{2 \cdot L_b \cdot K}{S_b^0} \quad (2.20)$$

Avec  $Ma$  le nombre de Markstein définit comme suit :

$$Ma = \frac{L_b}{\delta_L} \quad (2.21)$$

A l'aide d'un développement en série de Taylor, on obtient la formulation linéaire, qui a été utilisée jusqu'ici :

$$S_b = S_b^0 - L_b \cdot K \quad (2.22)$$

Finalement, la vitesse de combustion laminaire  $S_L^0$  non-étirée peut ainsi être déterminée à partir de la vitesse de propagation non-étirée des gaz brûlés ainsi que du rapport entre les densités des gaz brûlés et des gaz frais en utilisant l'expression suivante (qui est issue de la relation de conservation de la masse) :

$$S_L^0 = \frac{\rho_b}{\rho_u} \cdot S_b^0 \quad (2.23)$$

### 2.2.3.2 Longueur de Markstein du côté des gaz frais

Nous allons maintenant nous intéresser à la théorie menant à la détermination de la longueur de Markstein du côté des gaz frais. On va considérer ici que les gaz frais sont poussés par la flamme, pendant son développement, à une vitesse  $U_g$  (Voir Figure 2-5). Alors, la vitesse de combustion laminaire étirée  $S_L$  est définie comme suit :

$$S_L = S_b - U_g \quad (2.24)$$

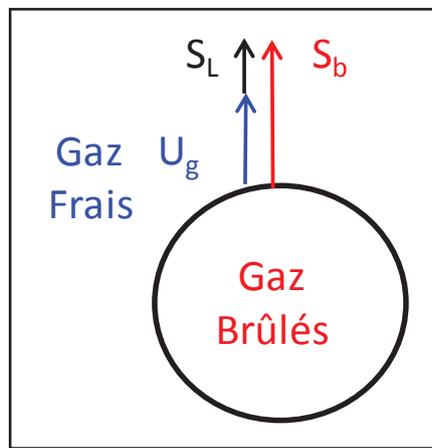


Figure 2-5: Schéma d'une flamme sphérique

Varea *et al.* (2011p) ont mis en place la technique couplant la tomographie et la PIV, afin de mesurer la vitesse de propagation de la flamme étirée  $S_b$  et la vitesse des gaz frais  $U_g$ , pour obtenir directement la vitesse de combustion laminaire étirée  $S_L$ . A l'aide des mêmes équations que précédemment, c'est-à-dire le cheminement qui permet d'obtenir l'Équation 2.20, mais en remplaçant  $U$  par le ratio  $S_L$  sur  $S_L^0$  et  $L_b$  par la longueur de Markstein du côté des gaz frais  $L_u$ , on obtient la formulation non-linéaire, proposée tout d'abord par Law (2006f) et reprise par Varea *et al.* (2011p) :

$$\left(\frac{S_L}{S_L^0}\right)^2 \cdot \ln\left(\left(\frac{S_L}{S_L^0}\right)^2\right) = -\frac{2 \cdot L_u \cdot K}{S_L^0} \quad (2.25)$$

En utilisant le même développement en série de Taylor que précédemment, on arrive à la formulation linéaire :

$$S_L = S_L^0 - L_u \cdot K \quad (2.26)$$

## 2.3 État de l'art sur les vitesses de combustion laminaire pour les carburants purs

De nombreuses expériences ont été menées afin d'étudier les vitesses de combustion laminaire, en particulier pour l'isooctane. Il existe différentes techniques afin de caractériser la vitesse de combustion laminaire : le tube ouvert à l'une de ces extrémités (Powling (1949)), le brûleur à contre-courant (Yu *et al.* (1986b) et Freech *et al.* (2004b)), le brûleur de type bec Bunsen (Kobayashi *et al.* (1996a; 2002d)) ou la bombe sphérique. A propos de cette dernière, différentes manières d'obtenir la vitesse de combustion laminaire sont utilisées : le relevé de la pression (Babkin *et al.* (1967) et Ryan *et al.* (1981b)), la technique Schlieren (Bradley *et al.* (1998c)), la technique d'ombroscopie, utilisée dans notre étude, et plus récemment la PIV (Particle imaging velocimetry ou Vélocimétrie à imagerie de particules) (Chong *et al.* (2011c; 2011d)). Dans sa plus grande majorité, cette revue présente les principales corrélations obtenues en général à partir d'expériences sur des enceintes à volume constant, permettant d'étudier les flammes prémélangées à haute pression. Cette étude permet de mieux appréhender les phénomènes liés à la combustion dans un moteur à allumage commandé. Les différentes plages de validité de la corrélation ou des données expérimentales sont précisées afin de comparer ensuite avec nos points expérimentaux.

### 2.3.1 Isooctane

#### 2.3.1.1 Corrélation de Babkin *et al.*

Des mesures expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire ont été réalisées par Babkin *et al.* (1967) pour des mélanges isooctane/air à partir du relevé de la pression dans une enceinte à volume constant. La corrélation déduite permet d'estimer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de température allant de 423 à 650 K et de pression

allant de 0.1 à 10 MPa, mais seulement pour un mélange air/isooctane stœchiométrique. Elle est de la forme suivante :

$$S_L^0 = (404 \cdot \log(T_u) - 1008) \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^{-0.39+0.4 \cdot (T_u/1000)} \quad (2.27)$$

Avec  $T_u$  et  $P_u$  respectivement la température (en K) et la pression (en MPa) des gaz frais,  $P_0$  la pression de référence fixée à 0.1 MPa et  $S_L^0$  en cm/s.

### 2.3.1.2 Corrélation de Metghalchi et Keck

Metghalchi et Keck (1982c) ont aussi réalisé des mesures pour des mélanges isooctane/air dans une enceinte à volume constant, à partir du relevé de la pression, mais pour une pression initiale allant de 0.04 à 5 MPa, une température initiale de 298 à 700 K et une richesse de 0.8 à 1.4. La corrélation proposée se présente de la façon suivante :

$$S_L^0 = S_{L,0}^0 \cdot \left(\frac{T_u}{T_0}\right)^\alpha \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^\beta \quad (2.28)$$

Avec  $S_{L,0}^0$  la vitesse de combustion laminaire à  $T_0$  et  $P_0$  (soit respectivement à 298 K et 0.1 MPa) et  $\alpha$  et  $\beta$ , les coefficients liés à la richesse du mélange définis comme :

$$S_{L,0}^0 = C_m + C_2 \cdot (\Phi - \Phi_m)^2 \quad (2.29)$$

$$\alpha = 2.18 - 0.8(\Phi - 1) \quad (2.30)$$

$$\beta = -0.16 + 0.22(\Phi - 1) \quad (2.31)$$

Les constantes  $C_m$ ,  $C_2$  et  $\Phi_m$  sont données dans le Tableau 2-1 :

Tableau 2-1: Constantes de la corrélation de Metghalchi et Keck (1982c) pour l'isooctane

| $C_m$ (cm/s) | $C_2$ (cm/s) | $\Phi_m$ |
|--------------|--------------|----------|
| 33.73        | -110.82      | 1.13     |

### 2.3.1.3 Corrélation de Gülder

Gülder (1984c) a aussi effectué des essais expérimentaux de la vitesse de combustion laminaire dans une bombe à volume constant, à l'aide de sondes de ionisation, pour des mélanges isooctane/air sur une plage de température allant de 300 à 500 K, de pression de 0.1 à 0.8 MPa et de richesse de 0.8 à 1.3. La corrélation est de la même forme que celle de Metghalchi et Keck (1982c) qui a été présentée en (2.28).

$T_0$  étant cette fois-ci à 300 K et  $S_{L,0}^0$  peut s'écrire en fonction de la richesse :

$$S_{L,0}^0 = W \cdot \Phi^n \cdot \exp(-\xi \cdot (\Phi - 1.075)^2) \quad (2.32)$$

Avec

Tableau 2-2: Constantes de la corrélation de Gülder (1984c) pour l'isooctane

| W (cm/s) | n      | $\xi$ | $\alpha$ | $\beta$ |
|----------|--------|-------|----------|---------|
| 46.58    | -0.326 | 4.48  | 1.56     | -0.22   |

### 2.3.1.4 Corrélation de Müller *et al.*

Müller *et al.* (1997c) ont proposé une corrélation sur les vitesses de combustion laminaire issues non pas de données expérimentales mais de simulations numériques, réalisées à l'aide de leur propre programme de calcul, en utilisant les données cinétiques de Peters (1994b). Ils ont modélisé une flamme plane à l'état stationnaire et ont résolu les équations 1D de continuité, d'énergie et de fractions massiques des espèces chimiques. La corrélation est valide pour une plage de pression allant de 0.1 à 4.0 MPa, de température de 298 à 800 K et de richesse de 0.5 à 1.

La corrélation proposée est de la forme suivante :

$$S_L^0 = A(T^0) \cdot Y_{F,u}^m \cdot \frac{T_u}{T^0} \cdot \left( \frac{T_b - T^0}{T_b - T_u} \right)^n \quad (2.33)$$

Avec  $T_b$  la température des gaz brûlés,  $Y_{F,u}$  la fraction massique de carburant dans les gaz frais,  $T^0$  la température d'équilibre entre les réactions de ramification et celles de rupture, aussi appelée température interne et  $A(T^0)$ , défini comme :

$$A(T^0) = F \cdot \exp\left(-\frac{G}{T^0}\right) \quad (2.34)$$

$$T^0 = -\frac{E}{\ln\left(\frac{P_u}{B}\right)} \quad (2.35)$$

La température  $T_b$  des gaz brûlés est approximée à l'aide de la relation suivante :

$$T_b = a \cdot T_u + b + c \cdot \Phi + d \cdot \Phi^2 + e \cdot \Phi^3 \quad (2.36)$$

Avec

Tableau 2-3: Constantes de la corrélation de Müller *et al* (1997c) pour l'isooctane

| <b>B (MPa)</b>     | <b>E (K)</b> | <b>F (cm/s)</b> | <b>G (K)</b> | <b>m</b> | <b>n</b> | <b>a</b> | <b>b (K)</b> | <b>c (K)</b> | <b>d (K)</b> | <b>e (K)</b> |
|--------------------|--------------|-----------------|--------------|----------|----------|----------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| 3.80 <sup>E6</sup> | 20906        | 2926            | -25.6        | 0.5578   | 0.5214   | 0.61     | 936          | -1127        | 5326         | -3044        |

### 2.3.1.5 Corrélation de Bradley *et al*.

Bradley *et al*. (1998c) ont réalisé des mesures expérimentales pour des mélanges isooctane/air de la vitesse de combustion laminaire dans une bombe sphérique, à l'aide de la technique Schlieren. La corrélation proposée permet d'estimer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de pression allant de 0.1 à 1.0 MPa et de température allant de 358 à 450 K, et pour des richesses de 0.8 et 1. Celle-ci se présente de la façon suivante :

$$S_L^0 = S_{L,0}^0 \cdot \left(\frac{T_u}{T_0}\right)^{\alpha_T} \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^{\beta_P} \quad (2.37)$$

Avec  $T_0$  et  $P_0$  les conditions de références fixées respectivement à 358 K et 0.1 MPa.

Les constantes  $S_{L,0}^0$ ,  $\alpha_T$  et  $\beta_P$  sont définis dans le Tableau 2-4 :

Tableau 2-4: Constantes de la corrélation de Bradley *et al.* (1998c) pour l'isooctane

| Richesse   | $\alpha_T$ | $\beta_P$ | $S_{L,0}^0$ (cm/s) |
|------------|------------|-----------|--------------------|
| <b>0.8</b> | 1.07       | -0.348    | 40                 |
| <b>1.0</b> | 1.01       | -0.282    | 48                 |

### 2.3.1.6 Corrélation de Martz *et al.*

Martz *et al.* (2011) ont réalisé aussi des simulations numériques de la vitesse de combustion laminaire pour des mélanges isooctane/air, à l'aide du logiciel HTC créé par Lund (1978). Une flamme 1D laminaire prémélangée en mode transitoire a été modélisée, utilisant un schéma cinétique d'oxydation de l'isooctane contenant 215 espèces conçu par Tham *et al.* (2008g) sur la base de celui de Curran *et al.* (2002a). Ils ont alors proposé une corrélation permettant d'évaluer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de pression allant de 0.1 à 25.0 MPa, de température allant de 298 à 1000 K et de richesse allant de 0.1 à 1.5. La corrélation est de la forme suivante :

$$S_L^0 = F \cdot Y_{F,u}^m \cdot \exp\left(-\frac{G}{T^0}\right) \cdot \frac{T_u}{T^0} \cdot \left(\frac{T_b - T^0}{T_b - T_u}\right)^n \quad (2.38)$$

Avec  $Y_{F,sto}$  la fraction massique de carburant à la stœchiométrie dans les gaz frais, et  $T^0$  la température interne.  $T^0$  et  $T_b$  sont approximées par les relations suivantes :

$$T^0 = \left(-\frac{E}{\ln\left(\frac{P_u}{B}\right)}\right) \cdot (Y_{F,u} + C_7)^{C_8} + C_9 \cdot T_u + a_1 \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^{a_3} \cdot (Y_{F,u}^{a_2} - Y_{F,sto}^{a_2}) \quad (2.39)$$

$$T_b = T_u + \Phi \cdot \left(c + d \cdot \Phi + e \cdot \Phi^2 + f \cdot T_u + g \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)\right) \quad (2.40)$$

Avec  $P_0$  fixée à 0.1 MPa

Les constantes de la corrélation de Martz *et al.* sont données ci-dessous pour l'isooctane :

Tableau 2-5: Constantes de la corrélation de Martz *et al.* (2011l) pour l'isooctane

| <b>F (cm/s)</b>      | <b>m</b>             | <b>G (K)</b>         | <b>n</b> | <b>B (MPa)</b>     | <b>E (K)</b> | <b>C<sub>7</sub></b> | <b>C<sub>8</sub></b> | <b>C<sub>9</sub></b> |
|----------------------|----------------------|----------------------|----------|--------------------|--------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| 280.583              | 2.0837               | -1357.3              | 4.9991   | 2.52 <sup>E9</sup> | 81 006       | 0.01599              | 0.4539               | 0.3218               |
|                      |                      |                      |          |                    |              |                      |                      |                      |
| <b>a<sub>1</sub></b> | <b>a<sub>2</sub></b> | <b>a<sub>3</sub></b> | <b>c</b> | <b>d</b>           | <b>e</b>     | <b>f</b>             | <b>g</b>             |                      |
| 0.72                 | -1.1                 | 0.1                  | 2638.1   | 194.6              | -773.045     | -0.34968             | 0.3432               |                      |

### 2.3.1.7 Corrélation de Marshall *et al.*

Marshall *et al.* (2011k) ont réalisé des essais expérimentaux pour des mélanges isooctane/air sur les vitesses de combustion laminaire dans une bombe sphérique, à l'aide du relevé de la pression et de la technique Schlieren. La corrélation présentée dans ces travaux permet d'évaluer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de pression allant de 0.07 à 1.7 MPa, de température allant de 310 à 640 K et de richesse allant de 0.7 à 1.4. Celle-ci prend la forme suivante :

$$S_L^0 = [S_{L,1}^0 + S_{L,2}^0 \cdot (\Phi - 1) + S_{L,3}^0 \cdot (\Phi - 1)^2 + S_{L,4}^0 \cdot (\Phi - 1)^3 + S_{L,5}^0 \cdot (\Phi - 1)^4] \cdot \left(\frac{T_u}{T_0}\right)^{(\eta_0 + (\Phi - 1) \cdot \eta_1)} \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^{(\beta_0 + (\Phi - 1) \cdot \beta_1)} \quad (2.41)$$

Avec  $T_0$  et  $P_0$  les conditions de références fixées respectivement à 298 K et 0.1 MPa

Les constantes de la corrélation de Marshall *et al.* pour l'isooctane, se trouvant dans l'équation (2.41), sont présentées dans le

Tableau 2-6 :

Tableau 2-6: Constantes de la corrélation de Marshall *et al.* (2011k) pour l'isooctane

| <b>S<sub>L,1</sub><sup>0</sup></b> | <b>S<sub>L,2</sub><sup>0</sup></b> | <b>S<sub>L,3</sub><sup>0</sup></b> | <b>S<sub>L,4</sub><sup>0</sup></b> | <b>S<sub>L,5</sub><sup>0</sup></b> | <b>η<sub>0</sub></b> | <b>η<sub>1</sub></b> | <b>β<sub>0</sub></b> | <b>β<sub>1</sub></b> |
|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| <b>(cm/s)</b>                      | <b>(cm/s)</b>                      | <b>(cm/s)</b>                      | <b>(cm/s)</b>                      | <b>(cm/s)</b>                      |                      |                      |                      |                      |

|       |       |        |       |       |       |          |         |        |
|-------|-------|--------|-------|-------|-------|----------|---------|--------|
| 28.48 | 13.11 | -80.05 | 56.59 | 57.73 | 1.889 | -0.08456 | -0.1997 | 0.1074 |
|-------|-------|--------|-------|-------|-------|----------|---------|--------|

On précise que leur corrélation est fautive pour les richesses supérieures à 1.2, car l'allure de la courbe des vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse obtenue n'est pas cohérente avec le reste des données trouvées dans la littérature. En effet, la forme en cloche si typique de l'évolution des vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse n'est pas retrouvée. Leur corrélation donne des vitesses de combustion laminaire qui diminuent à peine après  $\phi=1.2$ , au lieu de réellement décroître.

### 2.3.1.8 Autres données

A ces corrélations ont été ajoutées deux autres études menées par Beeckmann *et al.* (2009a) et Jerzembeck *et al.* (2009e). Tout d'abord, Beeckmann *et al.* ont effectué des essais expérimentaux sur la vitesse de combustion laminaire des mélanges iso-octane/air dans une enceinte à volume constant, à l'aide de la technique Schlieren, sur une plage de richesse allant de 0.8 à 1.2, pour une pression initiale de 1.0 MPa et une température initiale de 373 K. Jerzembeck *et al.* ont étudié eux aussi la vitesse de combustion laminaire des mélanges iso-octane/air dans une enceinte à volume constante, à l'aide de la technique Schlieren, à une température initiale de 373 K, mais pour une plage de richesse allant de 0.7 à 1.2 et de pression allant de 1.0 à 2.5 MPa.

### 2.3.1.9 Conclusions

Au terme de cette revue de la littérature sur les corrélations des vitesses de combustion laminaire pour les mélanges iso-octane/air, il a été constaté qu'il existait une multitude de données disponibles, réalisées avec des méthodes différentes. D'ailleurs, l'ensemble des domaines de validité des corrélations, ainsi que les techniques utilisées pour réaliser les essais, ont été rappelés dans le Tableau 2-7.

Tableau 2-7: Récapitulatif des domaines de validités des corrélations pour l'isooctane

| Corrélation                   | Gamme de richesse | Gamme de température | Gamme de pression | Installation | Technique             |
|-------------------------------|-------------------|----------------------|-------------------|--------------|-----------------------|
| <b>Babkin <i>et al.</i></b>   | 1                 | 423 à 650 K          | 0.1 à 10 MPa      | Enceinte     | Pression              |
| <b>Metghalchi et Keck</b>     | 0.8 à 1.4         | 298 à 700 K          | 0.04 à 5.0 MPa    | Enceinte     | Pression              |
| <b>Gülдер</b>                 | 0.8 à 1.3         | 300 à 500 K          | 0.1 à 0.8 MPa     | Enceinte     | Sonde de ionisation   |
| <b>Müller <i>et al.</i></b>   | 0.5 à 1           | 298 à 800 K          | 0.1 à 4.0 MPa     | Simulation   | Flamme 1D             |
| <b>Bradley <i>et al.</i></b>  | 0.8 et 1          | 358 à 450 K          | 0.1 à 1.0 MPa     | Enceinte     | Schlieren             |
| <b>Martz <i>et al.</i></b>    | 0.1 à 1.5         | 298 à 1000 K         | 0.1 à 25.0 MPa    | Simulation   | Flamme 1D             |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b> | 0.7 à 1.4         | 310 à 640 K          | 0.07 à 1.7 MPa    | Enceinte     | Pression et Schlieren |

Afin d'avoir un premier aperçu du comportement de ces corrélations empiriques, les vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression pour deux richesses  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b) pour les corrélations citées précédemment sur l'isooctane sont tracées sur la Figure 2-6. Mis à part la corrélation de Gülдер, qui est largement au-dessus des autres, l'ensemble des corrélations ont un comportement similaire avec l'augmentation de la pression initiale. Cependant, des écarts allant jusqu'à près de 20 cm/s sont observés entre les corrélations les plus éloignées les unes des autres sur l'ensemble des pressions et pour les deux richesses étudiées. Ceci met en évidence que dès 0.1 MPa de pression initiale, il semble y avoir de grandes disparités entre les différentes corrélations, ce qui justifie pleinement d'étudier de nouveau les mélanges isooctane/air dans notre étude.

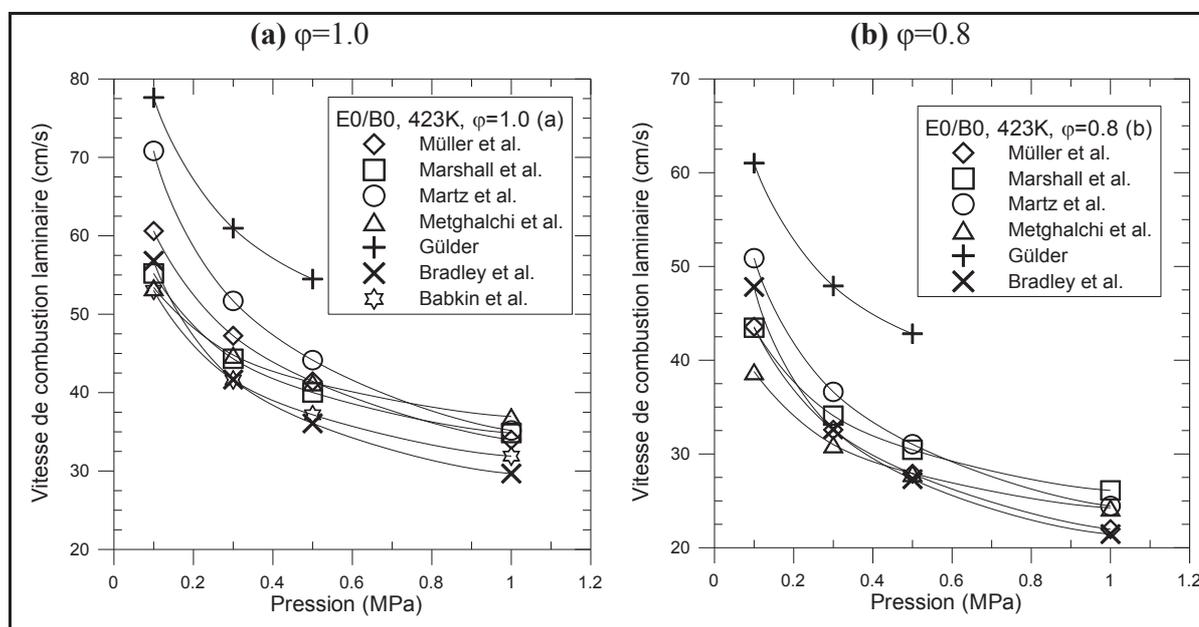


Figure 2-6: Évolution des vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression pour les corrélations de la littérature présentées pour l'isooctane pour  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b) et à une température initiale de 423 K

## 2.3.2 Éthanol

### 2.3.2.1 Corrélation de Gülder

Gülder (1984c) a effectué des essais expérimentaux sur la vitesse de combustion laminaire dans une bombe à volume constant, à l'aide de sondes de ionisation, pour des mélanges éthanol/air. La corrélation qu'il a alors proposée permet d'évaluer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de température allant de 300 à 500 K, de pression allant de 0.1 à 0.8 MPa et de richesse allant de 0.7 à 1.4. La corrélation est présentée dans la partie précédente dans les équations (2.28) et (2.32). Les constantes de la corrélation de Gülder sont présentées ci-dessous pour l'éthanol :

Tableau 2-8: Constantes de la corrélation de Gülder (1984c) pour l'éthanol

| W (cm/s) | n    | $\xi$ | $\alpha$ | $\beta$             |                           |
|----------|------|-------|----------|---------------------|---------------------------|
|          |      |       |          | $\Phi \leq 1$       | $\Phi \geq 1$             |
| 46.5     | 0.25 | 6.34  | 1.75     | $-0.17/\sqrt{\phi}$ | $-0.17 \cdot \sqrt{\phi}$ |

### 2.3.2.2 Corrélation de Liao *et al.*

Liao *et al.* (2007g) ont réalisé des essais expérimentaux sur la vitesse de combustion laminaire dans une enceinte à volume constant pour des mélanges éthanol/air, à l'aide de la technique Schlieren. La corrélation qu'ils ont alors proposée permet d'évaluer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de température allant de 300 à 550 K, de pression allant de 0.1 à 1.0 MPa et de richesse allant de 0.7 à 1.4. Cette dernière prend la même forme que celle de Bradley *et al.* (1998c) à l'équation (2.37) avec  $T_0$  et  $P_0$  les conditions de références fixées respectivement à 300 K et 0.1 MPa.  $S_{L,0}^0$  et  $\alpha_T$  sont définis ci-dessous :

$$S_{L,0}^0 = -207.07\Phi^2 + 450.1\Phi - 189.71 \quad (2.42)$$

$$\alpha_T = 1.783 - 0.375(\Phi - 1) \quad (2.43)$$

En ce qui concerne le coefficient  $\beta_p$ , Liao *et al.* ont repris la forme proposée par Gülder (1984c) :

Tableau 2-9: Constantes de la corrélation de Liao *et al.* (2007g) pour l'éthanol

|           |               |                           |
|-----------|---------------|---------------------------|
| $\beta_p$ | $\Phi \leq 1$ | $-0.17/\sqrt{\phi}$       |
|           | $\Phi \geq 1$ | $-0.17 \cdot \sqrt{\phi}$ |

### 2.3.2.3 Corrélation de Marshall *et al.*

Marshall *et al.* (2011k) ont réalisé des essais expérimentaux pour des mélanges éthanol/air sur les vitesses de combustion laminaire dans une bombe sphérique. La corrélation présentée dans ces travaux permet d'évaluer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de pression allant de 0.07 à 1.7 MPa, de température allant de 310 à 640 K et de richesse allant de 0.7 à 1.4. La corrélation est présentée dans la partie précédente dans l'équation (2.41).

Les constantes de la corrélation de Marshall *et al.* pour l'éthanol sont présentées dans le Tableau 2-10 :

Tableau 2-10: Constantes de la corrélation de Marshall *et al.* (2011k) pour l'éthanol

| $S_{L,1}^0$<br>(cm/s) | $S_{L,2}^0$<br>(cm/s) | $S_{L,3}^0$<br>(cm/s) | $S_{L,4}^0$<br>(cm/s) | $S_{L,5}^0$<br>(cm/s) | $\eta_0$ | $\eta_1$ | $\beta_0$ | $\beta_1$ |
|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|----------|----------|-----------|-----------|
| 27.47                 | 46.80                 | -81.89                | -71.44                | 374.6                 | 2.301    | -1.548   | -0.2625   | 0.1186    |

### 2.3.2.4 Corrélation de Eisazadeh-Far *et al.*

Eisazadeh-Far *et al.* (2011f) ont réalisé des essais expérimentaux pour des mélanges éthanol/air sur les vitesses de combustion laminaire dans une enceinte à volume constant, à l'aide du relevé de la pression. La corrélation présentée dans ces travaux permet d'évaluer la vitesse de combustion laminaire sur une plage de pression allant de 0.1 à 0.5 MPa, de température allant de 300 à 650 K et de richesse allant de 0.8 à 1.1. La corrélation est présentée ci-dessous :

$$S_L^0 = S_{L,0}^0 \cdot [1 + a_1 \cdot (1 - \Phi) + a_2 \cdot (1 - \Phi)^2] \cdot \left(\frac{T_u}{T_0}\right)^\alpha \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^\beta \quad (2.44)$$

Avec  $S_L^0$  la vitesse de combustion laminaire à la richesse stœchiométrique à  $T^0$  et  $P^0$  les conditions de références fixées respectivement à 300 K et 0.1 MPa, et T et P respectivement la température et la pression initiale.  $\alpha$  et  $\beta$  sont définis ci-dessous :

$$\alpha = \alpha_1 \cdot \Phi + \alpha_1 \quad (2.45)$$

$$\beta = \beta_1 \cdot \Phi^{\beta_2} \quad (2.46)$$

Les constantes de la corrélation de Eisazadeh-Far *et al.* sont données dans le tableau ci-dessous :

Tableau 2-11: Constantes de la corrélation de Eisazadeh-Far *et al.* (2011f) pour l'éthanol

| $S_L^0$ (cm/s) | $a_1$ | $a_2$ | $\alpha_1$ | $\alpha_2$ | $\beta_1$ | $\beta_2$ |
|----------------|-------|-------|------------|------------|-----------|-----------|
| 36.5           | -1.01 | -1.91 | -0.36      | 2.2        | -0.21     | -0.22     |

### 2.3.2.5 Autres données

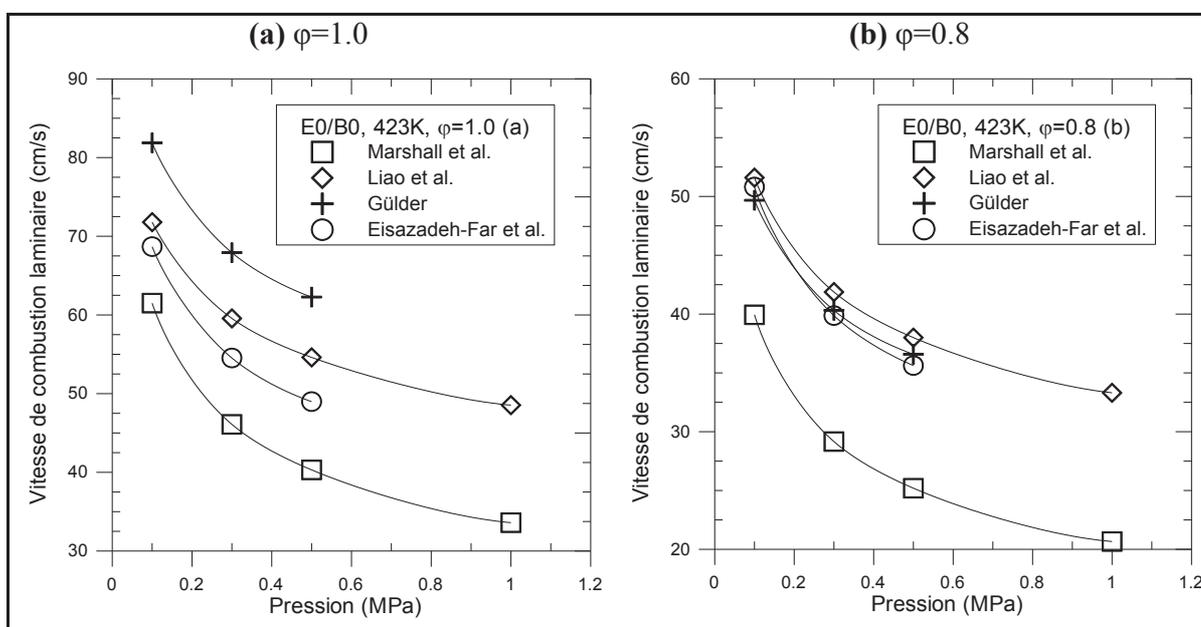
A ces corrélations ont été ajoutées deux autres études menées par Egolfopoulos *et al.* (1992b) et Beeckmann *et al.* (2009a). Tout d'abord, Egolfopoulos *et al.* ont étudié de manière expérimentale les mélanges éthanol/air à l'aide d'un brûleur à contre-courant sur une plage de richesse allant de 0.6 à 1.8, de température allant de 298 à 453 K et pour une pression initiale de 0.1 MPa. Enfin, Beeckmann *et al.* ont effectué des essais expérimentaux sur la vitesse de combustion laminaire des mélanges éthanol/air dans une enceinte à volume constant sur une plage de richesse allant de 0.8 à 1.2, pour une pression initiale de 1.0 MPa et une température initiale de 373 K.

### 2.3.2.6 Conclusion

Après avoir étudié la bibliographie sur les corrélations des vitesses de combustion laminaire pour les mélanges éthanol/air, il a été remarqué qu'il existait beaucoup moins de données disponibles que pour les mélanges isooctane/air. L'ensemble des domaines de validité des corrélations, ainsi que les techniques utilisées pour réaliser les essais, ont été rappelés dans le Tableau 2-12.

Tableau 2-12 : Récapitulatif des domaines de validités des corrélations pour l'éthanol

| Corrélation                        | Gamme de richesse | Gamme de température | Gamme de pression | Installation | Technique             |
|------------------------------------|-------------------|----------------------|-------------------|--------------|-----------------------|
| <b>Gülder</b>                      | 0.8 à 1.4         | 300 à 500 K          | 0.1 à 0.8 MPa     | Enceinte     | Sonde de ionisation   |
| <b>Liao <i>et al.</i></b>          | 0.7 à 1.4         | 300 à 550 K          | 0.1 à 1.0 MPa     | Enceinte     | Schlieren             |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>      | 0.7 à 1.4         | 310 à 640 K          | 0.07 à 1.7 MPa    | Enceinte     | Pression et Schlieren |
| <b>Eisazadeh-Far <i>et al.</i></b> | 0.8 à 1.1         | 300 à 650 K          | 0.1 à 0.5 MPa     | Enceinte     | Pression              |

Figure 2-7: Évolution des vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression pour les corrélations de la littérature présentées pour l'éthanol pour  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b) et à une température initiale de 423 K

De même que pour les mélanges isooctane/air, on va chercher à obtenir un premier aperçu du comportement des corrélations. Pour ce faire, les vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression pour deux richesses  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b) pour les corrélations citées précédemment sur l'éthanol sont tracées sur la Figure 2-7. A première vue, l'ensemble des corrélations a un comportement similaire avec l'augmentation de la pression initiale. Cependant, des écarts de 10 cm/s à 0.1 MPa et allant jusqu'à 20 cm/s à 1.0 MPa sont observés entre les corrélations les plus éloignées les unes des autres pour les deux richesses étudiées. Ceci met en évidence qu'il semble y avoir de grandes disparités entre les différentes corrélations, ce qui justifie pleinement d'étudier de nouveau les mélanges éthanol/air dans notre étude.

### 2.3.3 Butanol

Seulement deux études concernant les vitesses de combustion laminaire pour le butanol ont été réalisées par Beeckmann *et al.* (2009a) et par Gu *et al.* (2010e). Beeckmann *et al.* ont effectué des essais pour une plage de richesse de 0.8 à 1.3, à une pression initiale de 1.0 MPa et une température initiale de 373 K. Gu *et al.* ont complété cette première base de données en étudiant les 4 isomères du butanol sur une plage de richesse de 0.7 à 1.5, à la pression initiale de 0.1 MPa à 0.75 MPa à la température initiale de 428K, dans une enceinte à volume constant à l'aide de la technique Schlieren. Aucune corrélation n'a donc été proposée pour ce carburant.

### 2.3.4 Autres auteurs

Il existe bien d'autres auteurs qui ont réalisées des essais expérimentaux sur les vitesses de combustion laminaire et qui en ont tirés des corrélations. Cependant, la plage de validité de leur corrélation ou leurs données expérimentales étaient beaucoup trop éloignés de nos conditions initiales d'expérience. C'est pourquoi ils ne sont présentés que rapidement ici et pourquoi ils n'ont pas été mis en comparaison avec nos données expérimentales.

Entre autres, on peut citer Roberts (1959), qui est le premier à avoir étudié les vitesses de combustion laminaire pour des alcools. Bradley *et al.* (2009b) ont étudié les vitesses de combustion laminaire pour des mélanges éthanol/air, tout comme Veloo *et al.* (2010j) et Konnov *et al.* (2011j). En ce qui concerne le butanol, Grana *et al.* (2010d) et Veloo *et al.* (2010j; 2011q) s'y sont intéressés. Enfin, d'autres auteurs ont publié sur l'isooctane comme Davis et Law (1998d), Kumar *et al.* (2007f) et Ryan et Lestz (1981b). On peut enfin noter que van Lipzig *et al.* (2011o) ont étudié très récemment les vitesses de combustion laminaire pour les mélanges isooctane/éthanol (0, 50 et 100% en volume).

Cette revue bibliographique nous montre l'abondance de données sur les vitesses de combustion laminaire, en ce qui concerne l'isooctane, mais nettement moindre pour les alcools, tout particulièrement pour le butanol. Notre étude va donc avoir pour objectif d'apporter des données supplémentaires sur ces alcools, mais surtout d'enrichir la littérature avec les résultats sur des mélanges isooctane/alcool, afin de proposer une corrélation en fonction de la concentration d'alcool.

## 2.4 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental qui a été utilisé pour déterminer les vitesses de combustion laminaire est une chambre sphérique en acier inoxydable, d'un volume intérieur de 4.22L, qui a été chauffée de manière homogène à la température initiale de 423K pour cette étude. Deux hublots placés face à face permettent d'utiliser la technique d'ombroscopie afin de suivre la propagation du front de flamme en fonction du temps.

L'allumage des mélanges est réalisé par l'intermédiaire de 2 électrodes en tungstène, placées au centre de l'enceinte et séparées de 1mm, reliées à une bobine d'allumage chargée durant 1ms.

Avant de remplir la chambre du mélange air/carburant désiré, l'enceinte est tirée au vide jusqu'à  $P = 0.0001$  MPa. L'air y est ensuite introduit à l'aide d'un débitmètre massique (Brooks) d'un débit maximal de 4NL/min (Précision de la mesure : +/- 0.7% du débit;

Répétabilité : +/- 0.25% du débit) à une pression amont de 1.5 MPa. L'air introduit est synthétique et composé de 79.5% de N<sub>2</sub> et de 20.5% de O<sub>2</sub>. Le carburant liquide est stocké dans un réservoir pressurisé à 3.5 MPa par de l'Helium, afin de minimiser l'absorption du gaz dans le liquide. Il est injecté à l'aide d'un débitmètre massique (Bronkhorst) d'un débit maximal de 30g/h (Précision de la mesure : +/- 0.2% du débit; Répétabilité : +/- 0.22% du débit). Les sorties des deux débitmètres massiques sont reliées par un capillaire qui amène le mélange air/carburant jusqu'à la chambre. Il faut noter que pour minimiser l'erreur sur l'injection de carburant liquide, l'injection d'air commence un peu avant le carburant et se finit après celle du carburant liquide afin d'éviter la présence de goutte de carburant dans le capillaire. L'air et le carburant sont alors chauffés à 453 K pour notre étude avant d'être introduits dans l'enceinte, afin de s'assurer de la totale vaporisation du carburant liquide. Un capteur pression piézoélectrique permet de vérifier la pression finale, une fois le mélange air/carburant introduit. Un ventilateur est positionné dans la chambre afin de brasser le mélange air/carburant et de s'assurer de sa parfaite homogénéité. Ce dernier est arrêté 5s avant l'étincelle afin que le mélange air/carburant soit au repos.

Les mélanges avec 0, 25, 50, 75 et 100% en volume d'alcool dans l'isooctane, éthanol et butanol, ont ainsi été étudiés. La richesse du mélange air/carburant a été variée de 0.7 à 1.4. Pour chaque richesse étudiée, les essais ont été répétés trois fois pour assurer la précision, et permettre de calculer une valeur moyenne, ainsi qu'une variation pour s'assurer de la fiabilité de l'expérience. Cette variation pour l'ensemble des tests a été trouvée inférieure à +/- 1.0 cm/s. Pour plus de lisibilité, sur toutes les figures qui vont suivre, la barre d'erreur ne sera pas représentée.

## **2.5 Détermination de la vitesse de combustion laminaire**

Afin d'estimer la vitesse de combustion laminaire, la propagation du front a été enregistrée via la technique d'ombroscopie. Un faisceau de rayons parallèles émis d'un laser continu Argon ionisé est généré à l'aide de deux lentilles plano-convexes, qui pénètre dans la chambre via un des deux hublots et ressort par l'autre pour venir impacter un écran de

visualisation placé en sortie. Les images de la flamme qui apparaissent sur l'écran sont filmées par une caméra haute vitesse CMOS Photron opérant à 6000 images/s. Le temps d'exposition a été fixé à  $20\mu\text{s}$  et la résolution spatiale à  $512 \times 512$  pixels<sup>2</sup>. Le grandissement était de 0.150 mm/pixel. Une vue schématique globale du système est présentée en Figure 2-8.

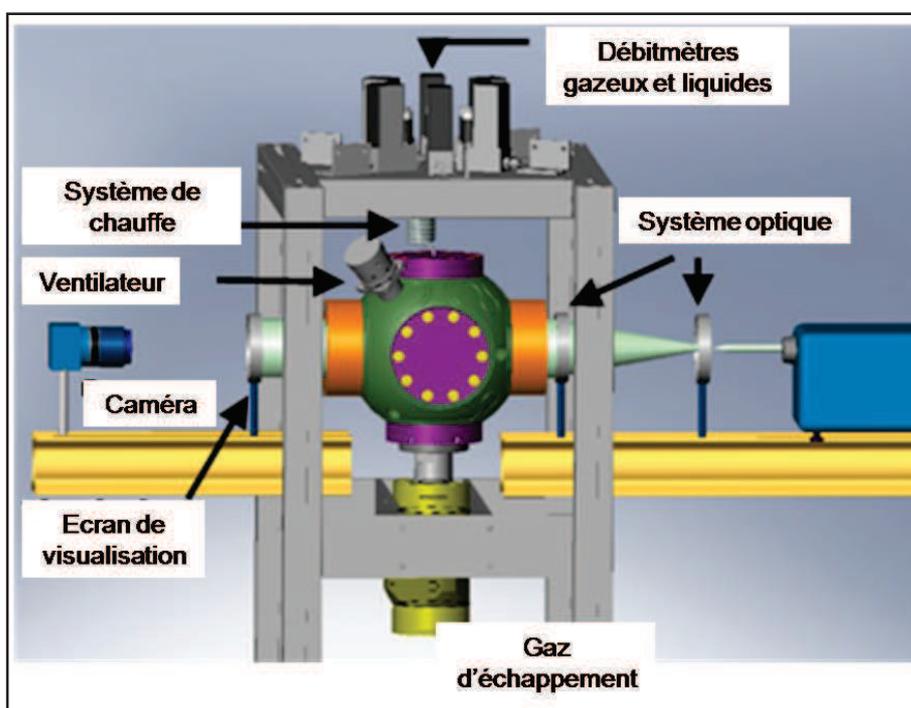


Figure 2-8: Schéma du système d'ombroscopie

En Figure 2-9, un exemple de propagation de flamme pour un mélange stœchiométrique d'E75 à 0.1 MPa de pression initiale et 423 K de température initiale est présenté. Une propagation sphérique du front de flamme est considérée, ce qui permet de faire correspondre la zone lumineuse par un cercle. L'effet de l'étincelle est considéré négligeable sur l'expansion de la flamme pour un rayon de flamme supérieur à 6mm (Bradley *et al.* (1998c)). A partir de là, seules les images correspondantes à des rayons de flamme supérieurs à 6.5mm et inférieurs à 25mm ont été prises en compte dans le traitement, ce qui correspond à un volume total de gaz brûlés inférieur à 1.6% du volume total de l'enceinte, ce qui permet de considérer que la pression totale dans la chambre reste constante. De plus, cette limitation à

25mm autorise la détermination de la vitesse de combustion laminaire même si la flamme devient cellulaire au-delà (cas rencontré seulement pour de fortes richesses). En effet, les petites cellules induisent une forte accélération de la flamme, particulièrement visible pour les grands rayons de flamme qui ne sont pas considérés dans notre analyse.

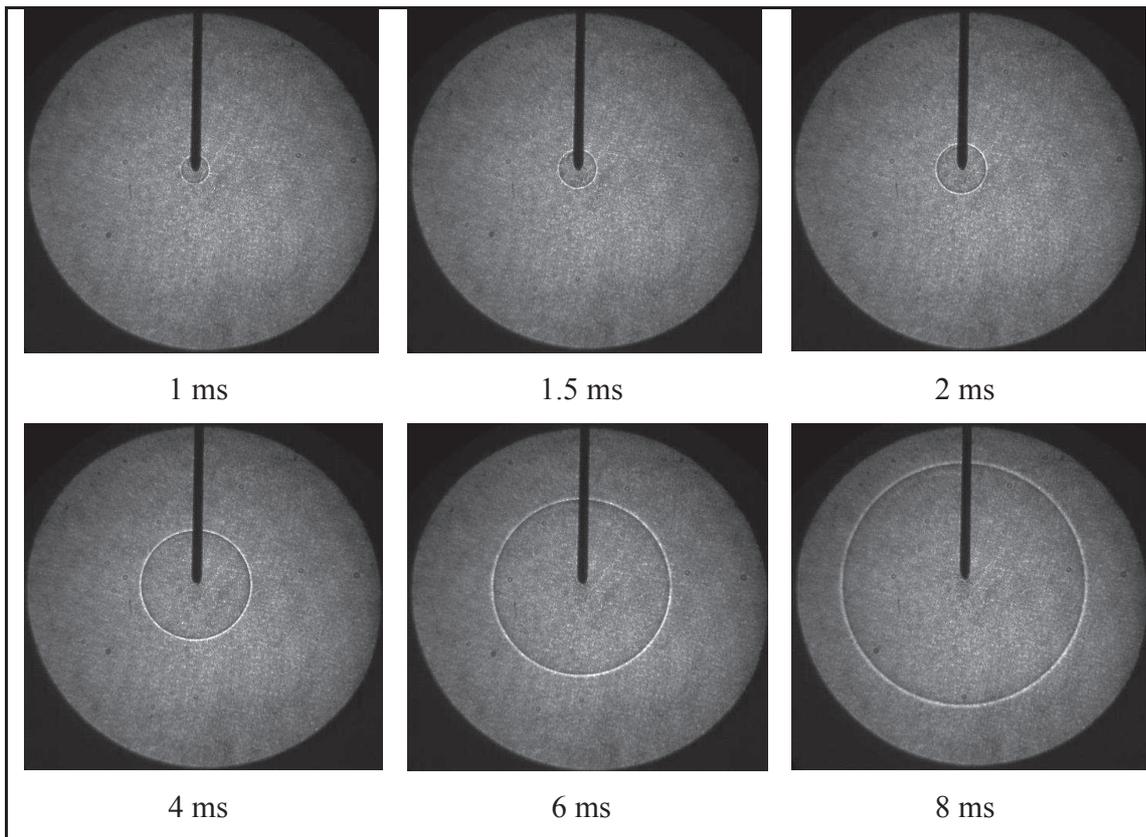


Figure 2-9: Évolution temporelle du front de flamme pour du E75 ( $\phi=1$ ,  $P=0.1$  MPa,  $T=423$  K)

La théorie concernant le développement des flammes sphériques a été vu précédemment. On va simplement en rappeler quelques étapes. Dans le cas présent d'une propagation sphérique des flammes, la vitesse de propagation de flamme étirée des gaz brûlés  $S_b$  provient de la dérivée du rayon de la flamme  $R_f$  par rapport au temps :

$$S_b = \frac{dR_f}{dt} \quad (2.47)$$

Actuellement, la relation linéaire reliant l'étirement de la flamme à la vitesse de propagation étirée  $S_b$ , permettant d'extraire la vitesse de propagation non-étirée des gaz brûlés  $S_b^0$  est généralement utilisée. Cependant, il a été mis en évidence par Halter *et al.* (2010f) que cette méthode entraînait des erreurs non-négligeables, par rapport à la méthode non-linéaire, sur les valeurs de vitesses de combustion laminaire pour des richesses supérieures à 1.1 dans le cas de mélanges air/méthane et inférieures à 1, dans le cas de mélanges air/isooctane. La méthode non-linéaire proposée à l'origine par Sivashinsky (1977b) et Buckmaster (1977a) a été récemment utilisée par Kelley et Law (2009g), Tahtouh *et al.* (2009k) et Halter *et al.* (2010f). C'est celle-ci qui a aussi été retenue pour cette étude.

La relation liant l'étirement de la flamme à la vitesse de propagation étirée peut s'écrire de la façon suivante :

$$\left(\frac{S_b}{S_b^0}\right)^2 \cdot \ln\left(\left(\frac{S_b}{S_b^0}\right)^2\right) = -\frac{2 \cdot L_b \cdot K}{S_b^0} \quad (2.48)$$

$L_b$  : Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés

Ensuite, la vitesse de combustion laminaire  $S_L^0$  peut ainsi être déterminée à partir de la vitesse de propagation non-étirée des gaz brûlés ainsi que du rapport entre les densités des gaz brûlés et des gaz frais en utilisant l'expression suivante (qui est issue de la relation de conservation de la masse) :

$$S_L^0 = \frac{\rho_b}{\rho_u} \cdot S_b^0 \quad (2.49)$$

Avec  $\rho_b$  densité des gaz brûlés et  $\rho_u$  densité des gaz frais.

Ces densités ont été calculées grâce au sous-programme EQUIL du package Chemkin (Kee *et al.* (1989a)) en utilisant un schéma cinétique d'oxydation regroupant un mélange isooctane/éthanol/butanol, non-publié à l'heure actuelle et développé par P. Dagaut (ICARE), et possédant 228 espèces et 1737 réactions. Ce schéma cinétique d'oxydation est basé sur le schéma cinétique d'oxydation d'un mélange de butanol et d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) de Dagaut et Togbé (2008d), sur le schéma cinétique d'oxydation de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et sur le schéma cinétique de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a).

Pour déterminer le rayon  $R_f$  de la flamme, ainsi qu'extraire la vitesse de combustion laminaire  $S_L^0$ , un programme réalisé sous Matlab a été utilisé. Avec la technique de l'ombroscopie, l'éclairement relatif sur l'image obtenue est proportionnel à la dérivée seconde des gradients transverses moyens de la densité traversée par le laser. La densité du milieu est fortement liée à la température (loi de Gladstone Dale (1864)). La dérivée seconde donne un pic maximal près des gaz frais, ce qui équivaut à une forte intensité sur l'image acquise, et un pic minimal près des gaz brûlés, ce qui équivaut à une faible intensité sur l'image. Le programme a été conçu pour que le rayon de la flamme déterminé par Matlab se place entre ces deux pics. Cet espace entre les deux pics correspond à quelques pixels. Ceci permet de bien mesurer, avec l'erreur la plus petite possible, le rayon  $R_f$  de la flamme et donc par là même la vitesse de combustion laminaire.

## **2.6 Résultats**

Dans un premier temps, les résultats sur les vitesses de combustion laminaire sont analysés puis comparés à la littérature, en ce qui concerne les carburants purs. Puis, l'effet de l'ajout d'alcool dans l'isooctane sur les vitesses de combustion laminaire est étudié. Enfin, les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés sont examinées, en particulier avec l'effet de la pression et de l'ajout d'alcool.

### **2.6.1 Effet de la pression sur les carburants purs**

#### **2.6.1.1 Données expérimentales**

Les résultats des vitesses de combustion laminaire pour différentes pressions initiales sont tracés en fonction de la richesse sur la Figure 2-10 pour chaque carburant pur (B0/E0 (a), B100 (b) et E100 (c)). Pour ces trois carburants, la forme en cloche si typique de l'évolution de la vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse se retrouve parfaitement ici, avec une valeur maximale de la vitesse de combustion laminaire proche de la richesse 1.1

(jusqu'à 0.5 MPa). Une augmentation de la pression initiale entraîne une baisse des vitesses de combustion laminaire sur l'ensemble de la plage de richesse. Cette diminution n'est pas linéaire, comme l'a montré Gülder (1982b), qui a proposé la corrélation suivante sur l'effet de la pression initiale sur les vitesses de combustion laminaire :

$$S_L^0 = S_{L,0}^0 \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^\beta \quad (2.50)$$

Avec  $P_0$  la pression de référence (=0.1 MPa) et  $\beta$  tel que  $-1 < \beta < 0$ .

A cause de la limite inférieure d'explosivité de l'isooctane assez élevée, il n'a pas été possible d'enflammer un mélange air/carburant ayant une richesse inférieure à 0.8. En ce qui concerne l'éthanol et le butanol, la limite inférieure d'explosivité étant plus faible que celle de l'isooctane, il a été possible d'enflammer le mélange air/carburant jusqu'à une richesse de 0.7, sauf pour le cas à 1.0 MPa.

Avec l'augmentation de la pression initiale, la flamme devient cellulaire, et ce pour des richesses supérieures à 1.3, 1.2 et 1 associées respectivement aux pressions initiales de 0.3 MPa, 0.5 MPa et 1.0 MPa. En effet, avec l'augmentation de la pression, l'épaisseur de flamme diminue, augmentant alors le gradient de température et donc les instabilités hydrodynamiques. Du coup, les instabilités thermo-diffusives arrivent de moins en moins à compenser les instabilités hydrodynamiques, ce qui mène à la naissance de cellules sur le front de flamme. Cependant, on remarque sur la Figure 2-10, comme sur la Figure 2-11, que l'éthanol permet d'obtenir une combustion d'un mélange air/carburant ayant une richesse plus élevée (1.4 et 1.3 respectivement pour des pressions initiales de 0.3 MPa et 0.5 MPa) sans qu'elles ne deviennent cellulaires. Ce carburant doit avoir une sensibilité plus faible aux perturbations extérieures (ex : électrodes). Sur la Figure 2-12, un exemple de propagation de flamme pour un mélange à la richesse 1.3 d'E100 à 0.5 MPa de pression initiale et 423 K de température initiale est présenté. On peut voir l'apparition de cellules pour des rayons suffisamment grands.

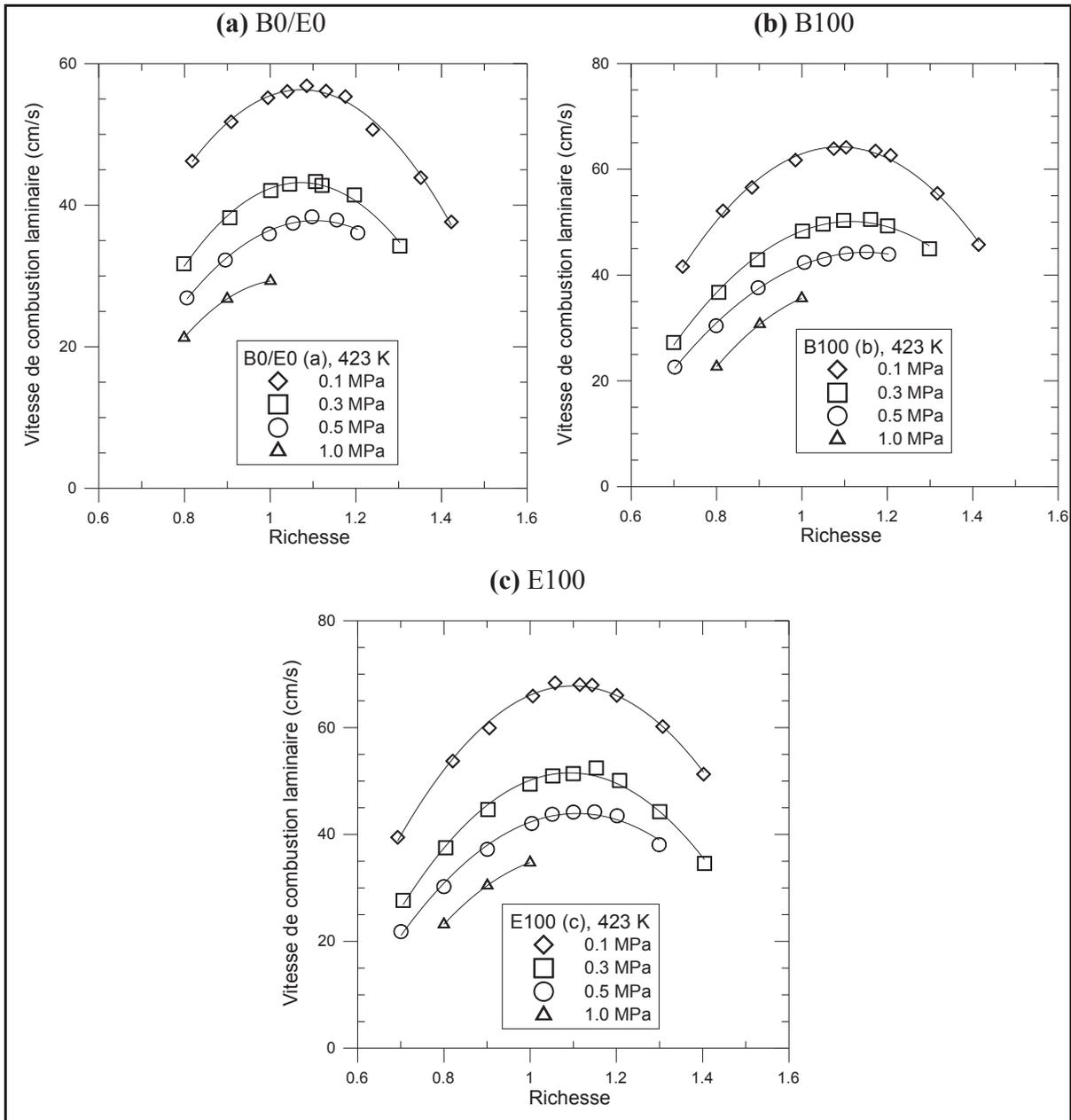


Figure 2-10: Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse à la température initiale de 423 K et différentes pressions initiales (0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa) pour B0/E0 (a), B100 (b) et E100 (c)

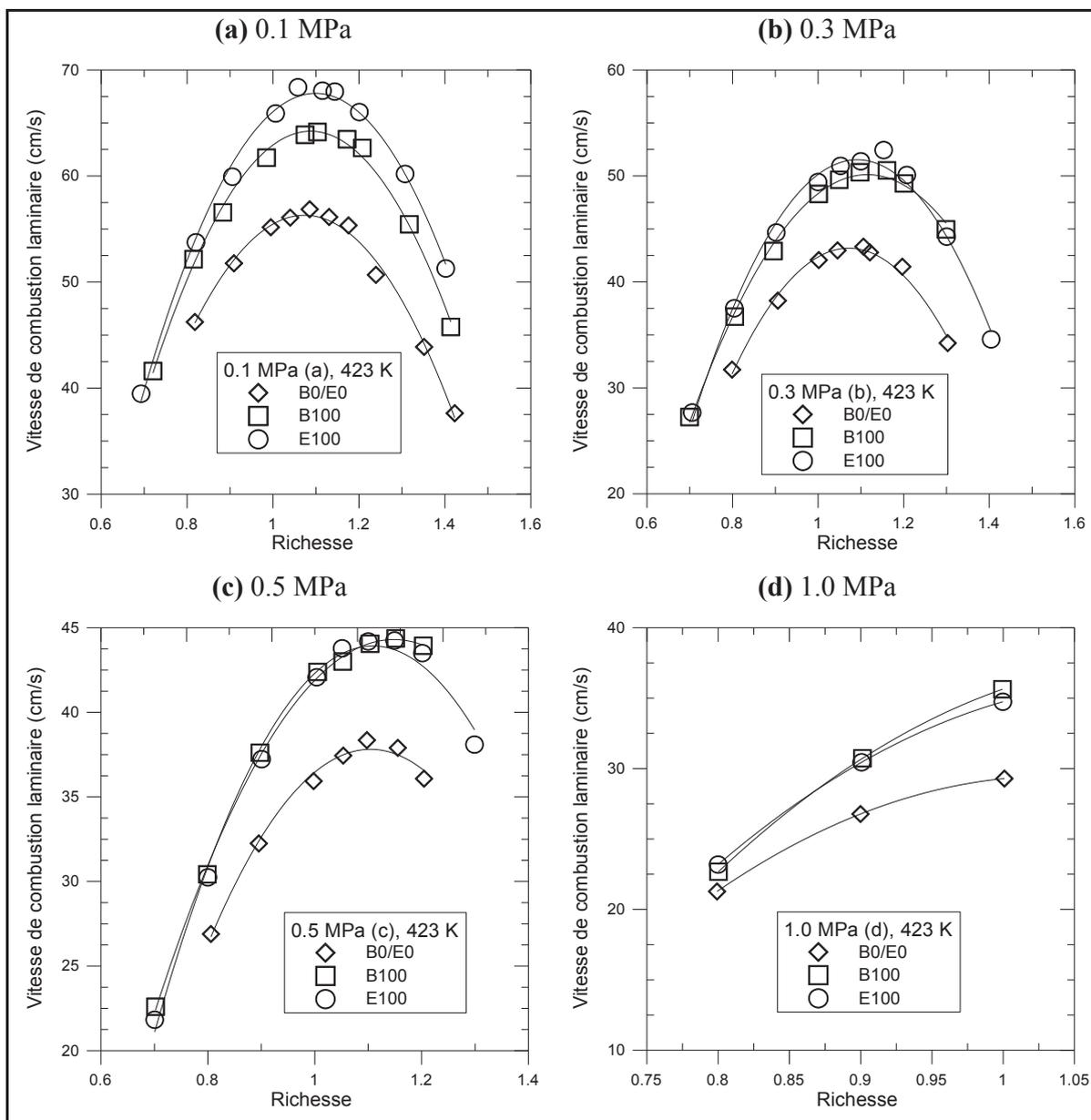


Figure 2-11: Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les carburants purs à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

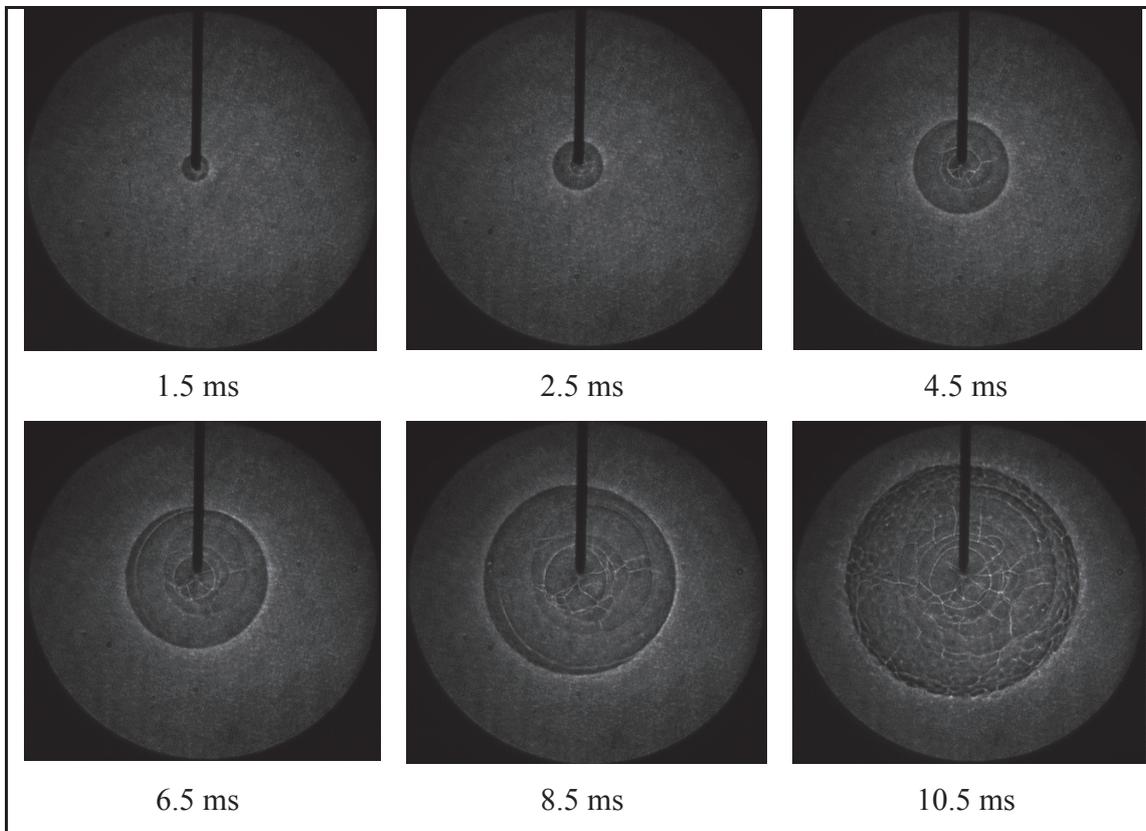


Figure 2-12: Évolution temporelle du front de flamme pour du E100 ( $\phi=1.3$ ,  $P=0.5$  MPa,  $T=423$  K)

Afin d'avoir une idée relative d'un carburant par rapport à l'autre, les résultats des vitesses de combustion laminaire pour les trois carburants purs (B0/E0, B100 et E100) ont été tracés en fonction de la richesse (Figure 2-11) et ce, pour les quatre pressions initiales (0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)). L'utilisation d'alcools permet d'obtenir des vitesses de combustion laminaire plus rapides que celles de l'isooctane, et plus rapide pour l'éthanol que pour le butanol. De plus, quand la pression initiale augmente, les valeurs de vitesses de combustion laminaire de l'éthanol et du butanol se rapprochent de plus en plus et deviennent finalement similaires, et l'écart entre alcools et isooctane se réduit lui aussi.

### 2.6.1.2 Comparaison avec la littérature : Isooctane

Les résultats de la comparaison entre les données de la littérature et nos valeurs expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'isooctane à une pression initiale de 0.1 MPa sur la Figure 2-13. De plus, dans le Tableau 2-13, les moyennes, minima et maxima des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de littérature sont présentés pour l'isooctane à 0.1 MPa. Tout d'abord, les valeurs issues des corrélations de Martz *et al.* (2011) et Gülder (1984c) sont clairement au-dessus de nos résultats expérimentaux, respectivement de 22 et 34% en moyenne (soit un écart absolu moyen de 11.7 et 18 cm/s), ainsi que des autres corrélations et valeurs des autres auteurs. On notera de plus que la vitesse maximale est décalée en richesse, puisqu'elle se trouve autour d'une richesse de 1.02 pour celle de Gülder, alors que l'ensemble des autres résultats semblent concorder pour une richesse de 1.1 pour la vitesse maximale. Ensuite, les données provenant de la corrélation de Müller *et al.* (1997c), même si elles sont proches de nos résultats expérimentaux (écart relatif moyen de 5%), montrent que les vitesses de combustion laminaire augmentent plus rapidement avec la richesse que nos résultats. Ensuite, les données obtenues via la corrélation de Marshall *et al.* (2011k) sont pratiquement superposées à nos résultats (écart relatif moyen de 5%), jusqu'à la richesse 1.2. Au-delà de 1.2, les valeurs de cette corrélation s'écartent de nos points, d'où un maximum de l'écart relatif de 25%. Ceci est dû au fait que cette corrélation n'est pas valable pour les richesses supérieures à 1.2, comme on l'a explicité précédemment. En ce qui concerne les données issues de la corrélation de Metghalchi et Keck (1982c), elles sont très proches de nos résultats avec un écart relatif moyen de 5%, mais de manière moins importantes sur la partie pauvre que sur la partie riche, d'où l'erreur relative maximale de 14% à  $\phi=0.8$ . Enfin, avec les données de Babkin *et al.* (1967) et Bradley *et al.* (1998c), une bonne concordance est observée avec nos points expérimentaux, puisque l'erreur relative moyenne est d'environ 4%.

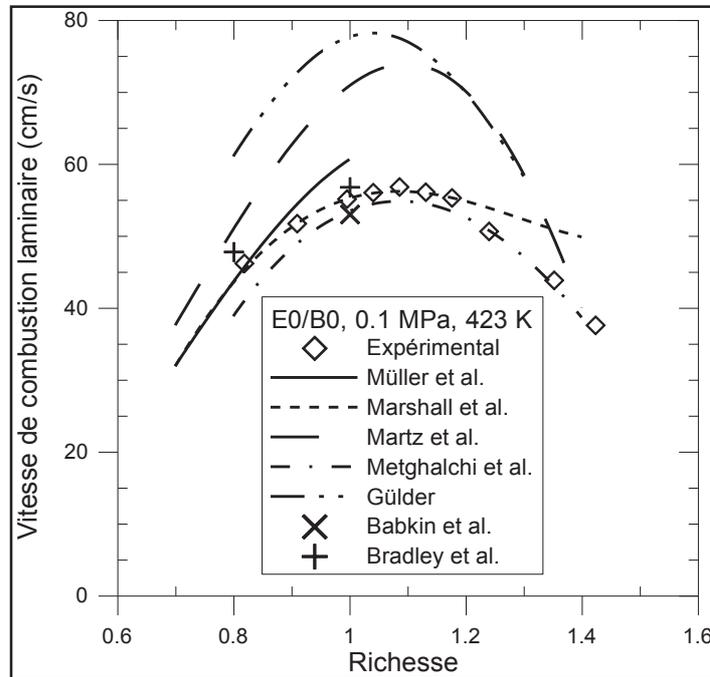


Figure 2-13: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa

Tableau 2-13: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa

|                                 | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|---------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                 |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Müller <i>et al.</i></b>     | 0.8 à 1           | 2.7                          | 5.2%          | 1.2%    | 9.3%    |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>   | 0.8 à 1.4         | 2.1                          | 4.7%          | 0.0%    | 24.8%   |
| <b>Martz <i>et al.</i></b>      |                   | 11.7                         | 22.2%         | 0.6%    | 30.4%   |
| <b>Metghalchi <i>et al.</i></b> |                   | 2.3                          | 4.6%          | 2.1%    | 14.2%   |
| <b>Gülder</b>                   | 0.8 à 1.3         | 18.0                         | 34.3%         | 20.9%   | 40.8%   |
| <b>Babkin <i>et al.</i></b>     | 1                 | 2.4                          | 4.3%          | 4.3%    | 4.3%    |
| <b>Bradley <i>et al.</i></b>    | 0.8 et 1          | 2.0                          | 4.1%          | 2.5%    | 5.8%    |

Dans le but d'alléger cette partie, les comparaisons entre nos points expérimentaux et les données issues de la littérature pour des pressions initiales de 0.3 et 1.0 MPa ont été placées dans l'Annexe II. Les résultats de la comparaison entre les valeurs provenant de la littérature et nos données expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour de l'isooctane à des pressions initiales de 0.3 et 1.0 MPa respectivement sur les Figure-A II-1 et Figure-A II-2, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés respectivement dans les Tableau-A II-1 et Tableau-A II-2.

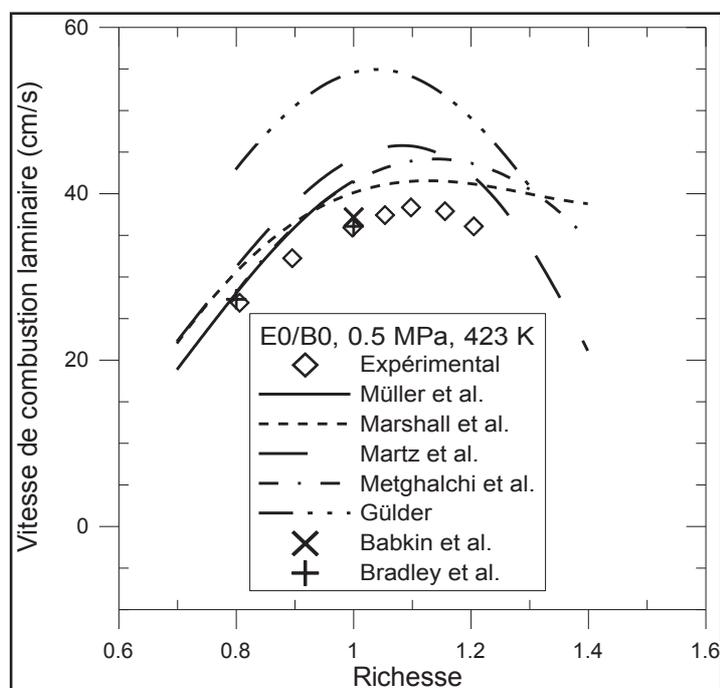


Figure 2-14: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa

Les résultats de la comparaison entre les valeurs provenant de la littérature et nos données expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'isooctane à une pression initiale de 0.5 MPa sur la Figure 2-14, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau 2-14. La bonne concordance entre nos résultats et

les valeurs de Babkin *et al.* et Bradley *et al.* se retrouve encore ici (écart relatif moyen de respectivement 3 et 2%). Cependant un éloignement de nos points avec les corrélations de Metghalchi et Keck, Müller *et al.*, Marshall *et al.* et Gülder est encore observé (comme à 0.3 MPa, voir Annexe II), puisque l'écart relatif moyen monte respectivement à 13, 11, 12 et 49% (soit 4.7, 3.4, 3.9 et 16.5 cm/s). Cependant, on s'aperçoit que l'écart absolu moyen avec la corrélation de Gülder a diminué par rapport à 0.1 MPa, mais cet écart reste tout de même très important. Enfin, les données de la corrélation de Martz *et al.* tendent à se rapprocher de nos valeurs expérimentales (l'écart relatif moyenne passe de 22 (à 0.1 MPa) à 19%, soit une baisse de l'écart absolu moyen de 12 à 6.7 cm/s). Ceci a été remarqué aussi à 0.3 MPa. Cependant, malgré cette amélioration, les données de Martz *et al.* sont toujours largement supérieures à nos valeurs.

Tableau 2-14: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa

|                                 | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|---------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                 |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Müller <i>et al.</i></b>     | 0.8 à 1           | 3.4                          | 10.5%         | 5.7%    | 15.1%   |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>   | 0.8 à 1.2         | 3.9                          | 11.6%         | 8.4%    | 15.4%   |
| <b>Martz <i>et al.</i></b>      |                   | 6.7                          | 19.4%         | 16.6%   | 22.6%   |
| <b>Metghalchi <i>et al.</i></b> |                   | 4.7                          | 13.2%         | 5.9%    | 20.2%   |
| <b>Gülder</b>                   |                   | 16.5                         | 49.0%         | 35.3%   | 62.3%   |
| <b>Babkin <i>et al.</i></b>     | 1                 | 1.2                          | 3.3%          | 3.3%    | 3.3%    |
| <b>Bradley <i>et al.</i></b>    | 0.8 et 1          | 0.5                          | 1.9%          | 0.2%    | 3.5%    |

Mis à part les corrélations de Gülder et Martz *et al.*, nos points expérimentaux étaient relativement proches de l'ensemble des données issues des corrélations et valeurs expérimentales proposées par la littérature en particulier à 0.1 MPa. Avec l'augmentation de la pression initiale, le nombre de corrélation diminue d'une part et la précision des valeurs aussi. A 0.5 comme à 1.0 MPa, les corrélations ne sont plus proches les unes des autres

comme c'était le cas à 0.1 MPa, ce qui justifie parfaitement l'étude que nous avons menée en particulier à haute pression, malgré le fait que l'isooctane soit un des carburants les plus étudiés actuellement. Cependant, nos données expérimentales se trouvent toujours dans une zone, où se concentre la majorité des données de la littérature, sans prendre en compte les corrélations de Gülder et Martz *et al.*.

### 2.6.1.3 Comparaison avec la littérature : Éthanol

Les résultats de la comparaison entre la littérature et l'expérimental sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'éthanol à une pression initiale de 0.1 MPa sur la Figure 2-15, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau 2-15.

Tout d'abord, les valeurs issues de la corrélations de Gülder (1984c) et les données expérimentales de Egolfopoulos *et al.* (1992b) sont bien supérieures à nos points expérimentaux, avec des moyennes de l'écart relatif respectivement de 16 et 14% (soit un écart absolu moyen de 9.8 et 8.3 cm/s). De plus, les données de Egolfopoulos *et al.* semblent être décalées en richesse, puisque la richesse pour le maximum de vitesse est légèrement décalé sur la droite. Quant à elle, les données provenant de la corrélation de Marshall *et al.* (2011k) sous-estiment nos valeurs empiriques, sauf autour de la richesse 1.1. Ceci est corrélé avec le minimum de l'écart relatif qui est proche de 0, et dans le même temps, la moyenne et le maximum sont très élevés, puisqu'ils atteignent respectivement 14 et 33%. Les deux corrélations qui sont les plus proches de nos points sont celles de Liao *et al.* (2007g) et Eisazadeh-Far *et al.* (2011f), avec une plus grande proximité vis-à-vis de nos résultats pour la dernière citée (écart relatif moyen respectivement de 8 et 4%, soit un écart absolu moyen de 4.3 et 2.5 cm/s).

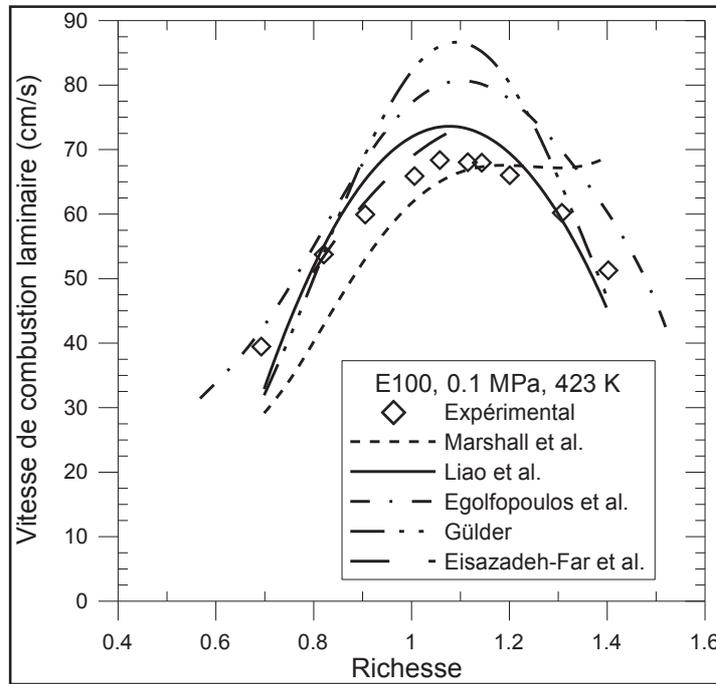


Figure 2-15: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa

Tableau 2-15 : Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.1 MPa

|                                   | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|-----------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                   |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>     | 0.7 à 1.4         | 7.3                          | 13.6%         | 0.7%    | 33.0%   |
| <b>Liao <i>et al.</i></b>         |                   | 4.3                          | 7.5%          | 1.0%    | 19.8%   |
| <b>Egolfopoulos <i>et al.</i></b> |                   | 8.3                          | 13.5%         | 1.0%    | 17.9%   |
| <b>Gülder</b>                     |                   | 9.8                          | 16.1%         | 0.8%    | 26.5%   |
| <b>Eisazadeh <i>et al.</i></b>    | 0.8 à 1.1         | 2.5                          | 3.9%          | 0.8%    | 7.3%    |

Dans le but d'alléger cette partie, les comparaisons entre nos points expérimentaux et les données issues de la littérature pour des pressions initiales de 0.3 et 1.0 MPa ont été placées dans l'Annexe II. Les résultats de la comparaison entre les valeurs provenant de la littérature

et nos données expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'éthanol à des pressions initiales de 0.3 et 1.0 MPa respectivement sur les Figure-A II-3 et Figure-A II-4, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés respectivement dans les Tableau-A II-3 et Tableau-A II-4.

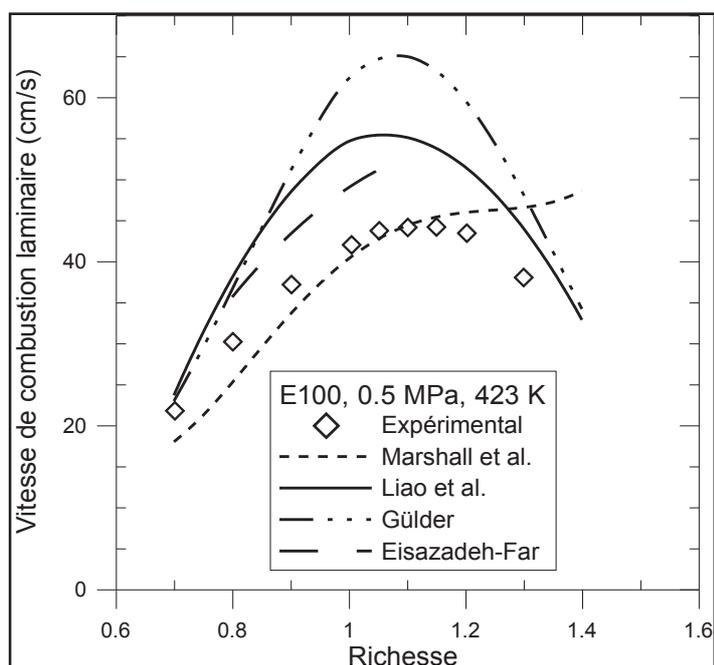


Figure 2-16: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa

Les résultats de la comparaison entre la littérature et l'expérimental sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'éthanol à une pression initiale de 0.5 MPa sur la Figure 2-16, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau 2-16. Les données de la corrélation de Gülder sont toujours au-dessus de nos points expérimentaux, tout comme celles de Liao *et al.* et Eisazadeh-Far *et al.*, qui s'éloignent de plus en plus de nos valeurs avec une augmentation respective de 8 et 4% (à 0.1 MPa) à 23 et 17% de l'écart relatif moyen (soit un passage de l'écart absolu moyen respectivement de 4.3 et 2.5 cm/s à 8.7 et 6.7 cm/s). Enfin, les valeurs de la corrélation de Marshall *et al.* se

trouvent toujours sous nos points, mais elles tendent à se rapprocher, comme le montrent les écarts relatifs moyen (de 14 (à 0.1 MPa) à 10%, soit en écart absolu moyen une baisse de 7.3 à 3.4 cm/s) et maximal, ce qui en fait à cette pression la corrélation la plus proche de la nôtre. L'ensemble de ces tendances avait déjà été remarqué à 0.3 MPa (Annexe II).

Tableau 2-16: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.5 MPa

|                                | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|--------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>  | 0.7 à 1.3         | 3.4                          | 10.1%         | 0.2%    | 22.6%   |
| <b>Liao <i>et al.</i></b>      |                   | 8.7                          | 22.7%         | 8.6%    | 30.3%   |
| <b>Gülde</b>                   |                   | 13.2                         | 33.0%         | 5.4%    | 48.4%   |
| <b>Eisazadeh <i>et al.</i></b> | 0.8 à 1.1         | 6.7                          | 17.2%         | 16.1%   | 19.1%   |

Comme pour l'isooctane, à 0.1 MPa, il y avait plusieurs corrélations qui donnaient des résultats proches de nos données expérimentales. Cependant avec l'augmentation de la pression, celles-ci se sont peu à peu éloignées de nos points. Dans le même temps, les données issues de la corrélation de Marshall *et al.*, qui n'étaient pas si proches de nos points à 0.1 MPa, se sont rapprochées des nôtres avec la pression, en particulier à 1.0 MPa.

Il faut aussi noter que seul Gülde (1984c; 1984b) avait proposé des données expérimentales sur les mélanges isooctane/éthanol, mais il n'a réalisé que des mélanges avec 10 et 20% en volume d'alcool dans l'isooctane. Ils n'ont pas été représentés ici, car comme nous l'avons vu sur les courbes précédentes, il y avait déjà un fort écart entre nos données et les siennes sur les carburants purs, d'où le choix que nous avons fait ne pas afficher les données sur les mélanges.

### 2.6.1.4 Comparaison avec la littérature : Butanol

Les résultats de la comparaison entre la littérature et l'expérimental sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour du butanol et différentes pressions initiales sur la Figure 2-17, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau 2-17.

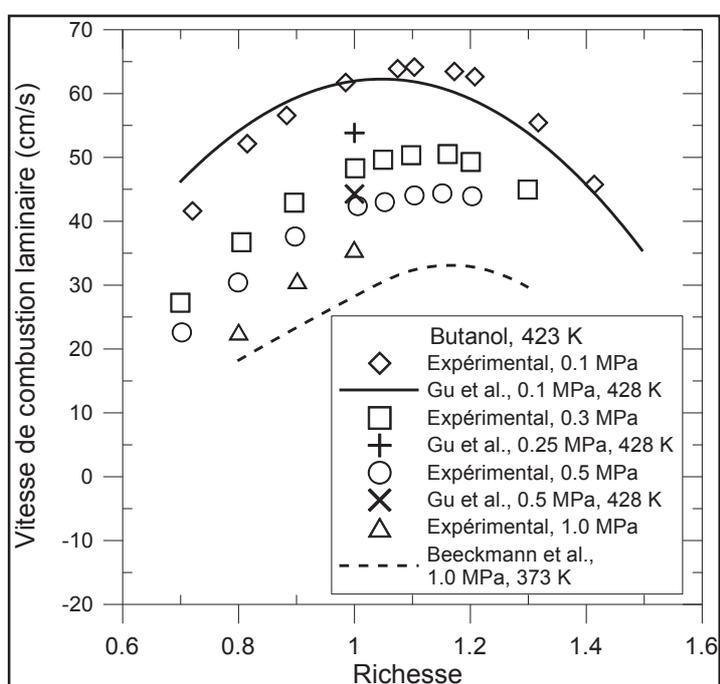


Figure 2-17: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour du butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa, 0.3 MPa, 0.5 MPa et 1.0 MPa

Tout d'abord à 0.1 MPa, les points expérimentaux de Gu *et al.* (2010e) sont vraiment proches des nôtres, ce qui est confirmé par la faible valeur de l'écart relatif moyen (5%), que l'on retrouve sur l'écart absolu moyen qui n'est que de 2.7 cm/s. Cependant, leur courbe est décalée en richesse vers la gauche, puisqu'ils obtiennent la vitesse maximale pour une richesse de 1, au lieu de 1.1 dans notre cas. Cependant, avec la montée en pression, il y a toujours une bonne concordance entre nos points et les leurs, sauf à 0.3 MPa, où leur point est un peu au-dessus de notre courbe. Mais ceci peut s'expliquer par le fait que la pression

initiale utilisée dans leurs essais était de 0.25 MPa, ce qui est cohérent avec le fait que leur point soit au-dessus des nôtres. Puis à 0.5 MPa, le point expérimental de Gu *et al.* (2010e) est toujours aussi proche de nos données, ce qui est confirmé par la faible valeur de l'écart relatif moyen et de l'écart absolu moyen qui sont respectivement de 4.5% et 1.9 cm/s. Ces valeurs ont même légèrement baissées par rapport à celles à 0.1 MPa. Enfin, à 1.0 MPa, en extrapolant les données expérimentales de Beeckmann *et al.* (2009a) à 423 K, il est envisageable de penser que les points seraient sensiblement proches des nôtres, car l'allure de leur courbe est similaire à la nôtre.

Tableau 2-17: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour le butanol à une température initiale de 423 K et pour différentes pressions initiales

|                                      | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|--------------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                      |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Gu <i>et al.</i>,<br/>0.1 MPa</b> | 0.7 à 1.4         | 2.7                          | 5.4%          | 0.3%    | 20.6%   |
| <b>Gu <i>et al.</i>,<br/>0.5 MPa</b> | 1                 | 1.9                          | 4.5%          | 4.5%    | 4.5%    |

### 2.6.2 Effet de l'ajout d'alcool

Les résultats des vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour les différents mélanges Isooctane/Alcool pour les quatre pressions initiales (0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)) sur la Figure 2-18 et la Figure 2-19 respectivement pour le butanol et l'éthanol.

L'ajout d'alcool dans l'isooctane entraîne une augmentation de la vitesse de combustion laminaire sur l'ensemble de la plage de richesse. Ce comportement est toujours observé avec l'augmentation de la pression, même si les différences entre les vitesses de combustion laminaire de l'isooctane et des alcools diminuent avec l'augmentation de la pression. En

outre, les vitesses de combustion laminaire des mélanges isooctane/alcools tendent à se rapprocher les unes des autres. Par endroit, une superposition des vitesses de combustion laminaire de certains carburants est même observée.

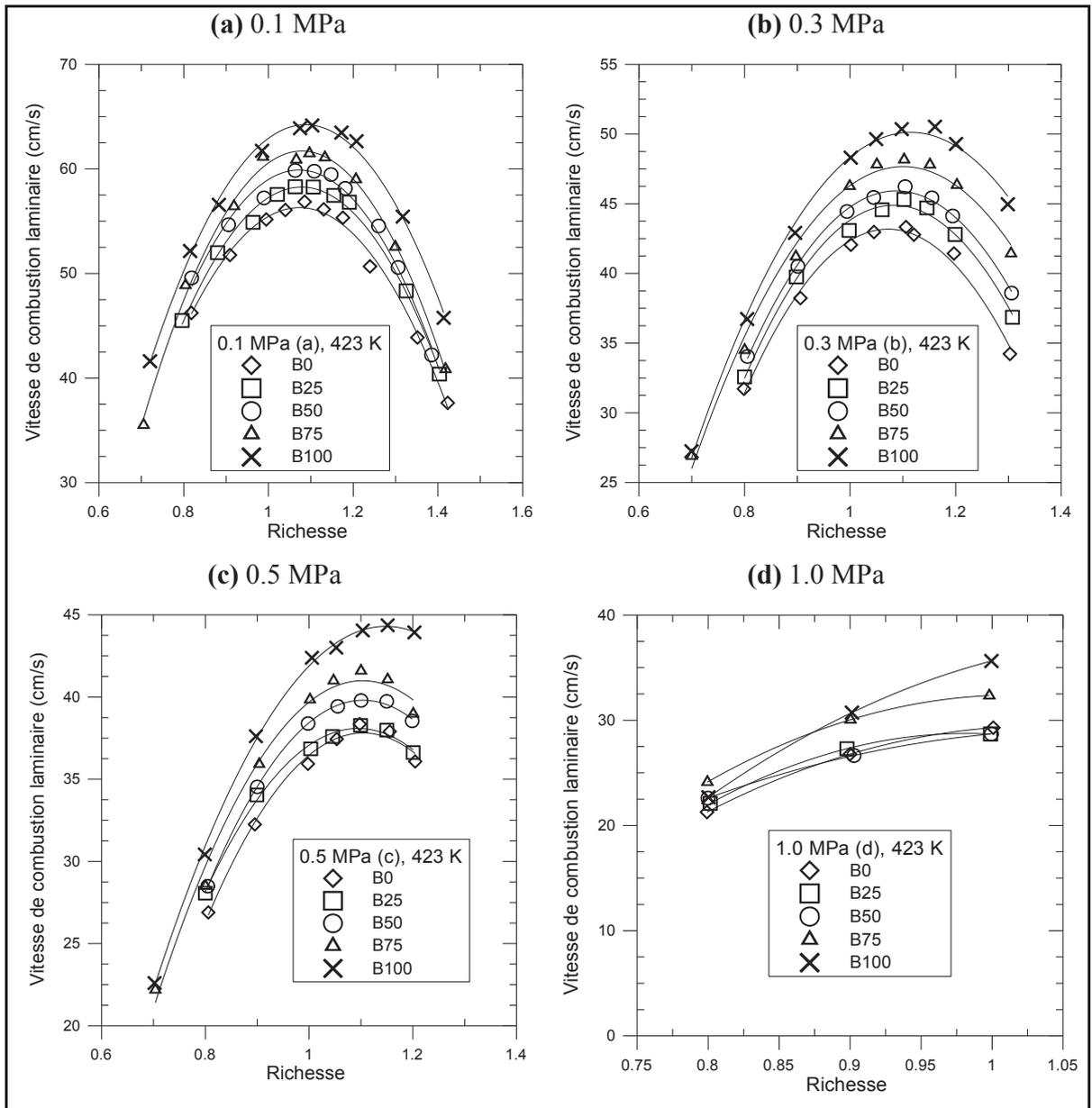


Figure 2-18: Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

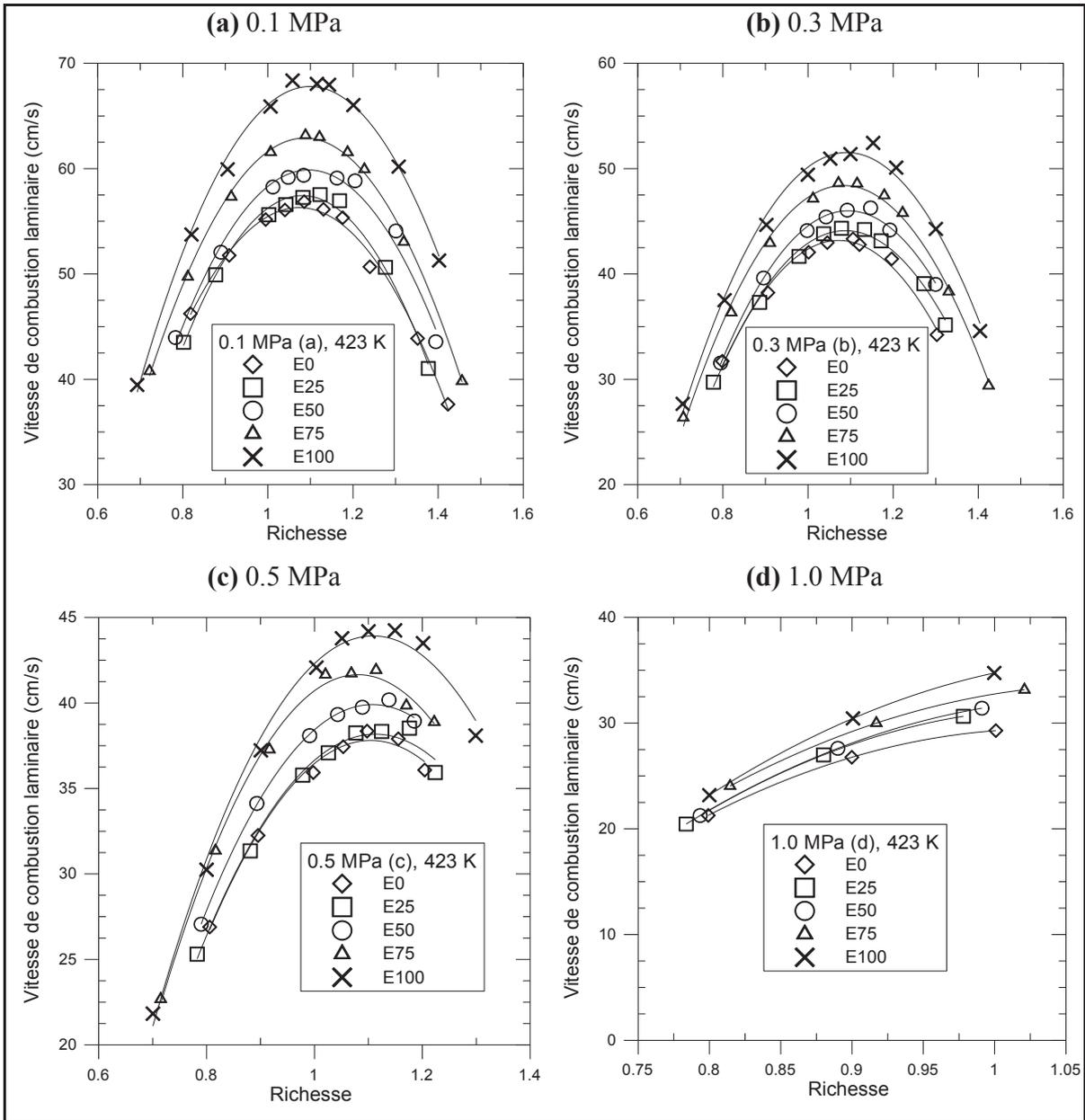


Figure 2-19: Vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

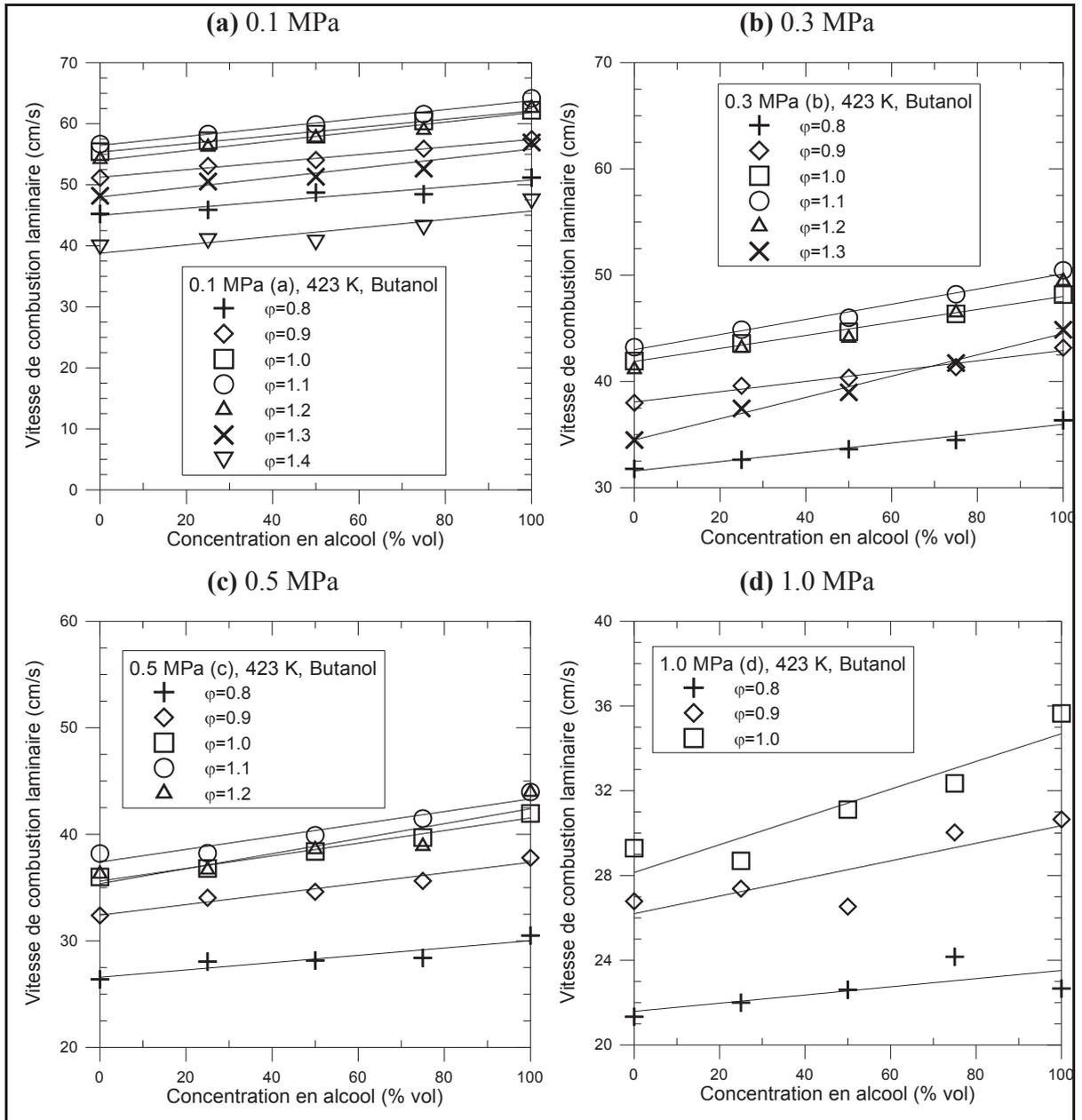


Figure 2-20: Vitesse de combustion laminaire en fonction de la concentration en butanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

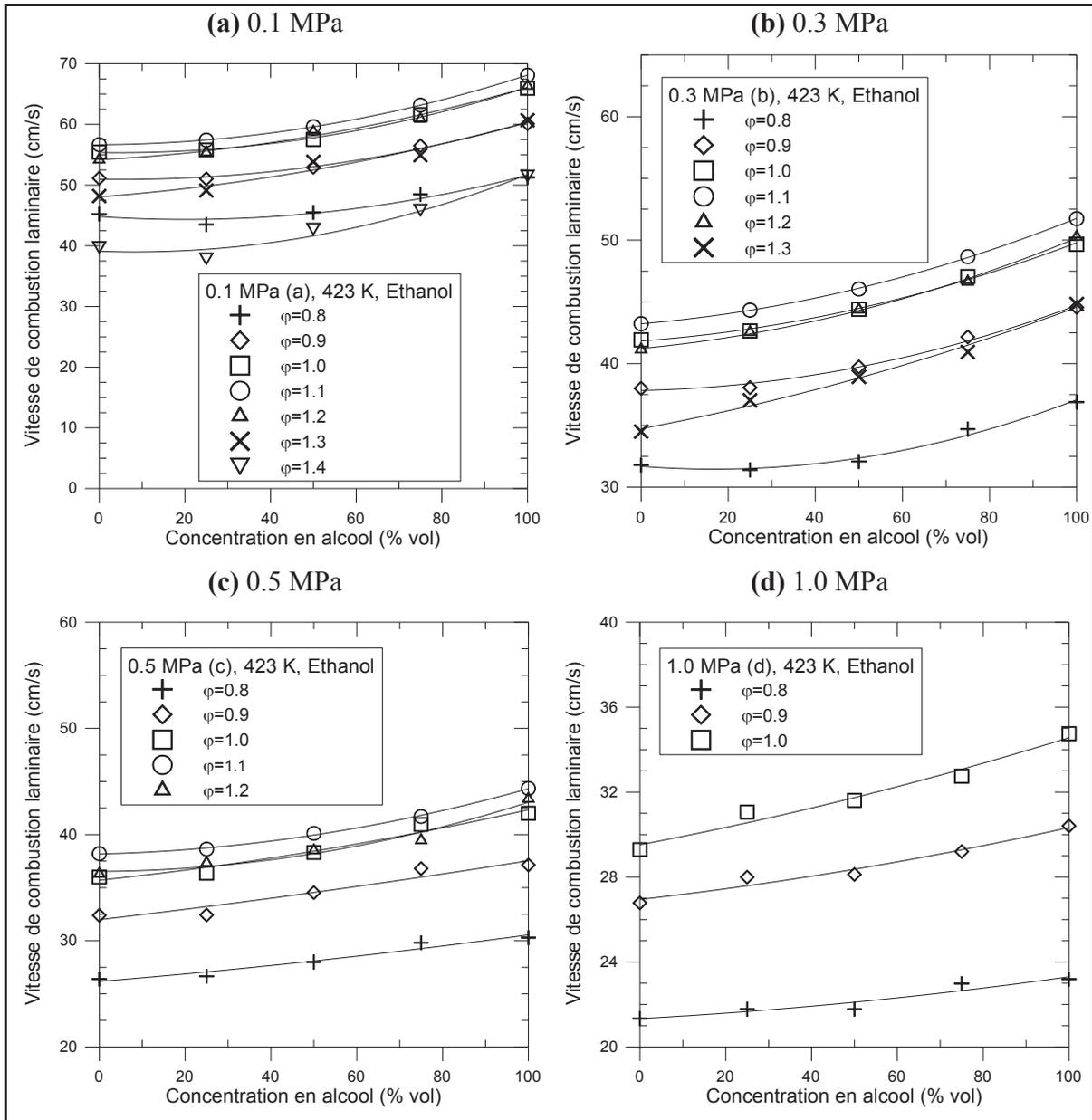


Figure 2-21: Vitesse de combustion laminaire en fonction de la concentration en éthanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Les résultats des vitesses de combustion laminaire sont aussi tracés en fonction de la concentration d'alcool pour différentes richesses et pressions initiales sur la Figure 2-20 et la Figure 2-21 respectivement pour le butanol et l'éthanol. On peut noter que pour l'ensemble des richesses étudiées, une évolution linéaire des vitesses de combustion laminaire avec la

concentration en butanol est observée ; mais, cette évolution dans le cas de l'éthanol ne semble pas linéaire, mais plutôt suivre une évolution exponentielle. Toutefois, avec l'augmentation de la pression, cette évolution de type exponentielle pour les mélanges isooctane/éthanol semble s'atténuer pour tendre vers une évolution linéaire. Cette observation devra être prise en compte lors de l'élaboration de la corrélation sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la concentration d'alcool.

### 2.6.3 Longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés

A l'heure actuelle, dans les codes de calcul 3D, une flamme étirée dans un moteur à allumage commandé, est découpée en éléments de flamme qui se déplacent à la vitesse  $S_L^0$ , la vitesse de combustion laminaire. Cette dernière est tabulée en fonction de la richesse, de la pression, de la température et du carburant utilisé. C'est pourquoi cette grandeur est fortement étudiée actuellement. Cependant, ces éléments de flamme lorsqu'ils se déplacent entre un instant  $t$  et  $t+dt$  ne prennent pas en compte la déformation de la flamme. Il est donc faux d'affirmer qu'ils se déplacent à la vitesse  $S_L^0$ . C'est pourquoi en tabulant la longueur de Markstein du côté des gaz brûlés aussi, en calculant le taux d'étirement de la flamme, déjà à l'aide de la formulation linéaire, la vitesse de propagation de la flamme étirée  $S_L$  pourrait être déterminée. Et cette dernière sera plus adéquate et précise pour déterminer la vitesse de ces éléments de flamme et donc de la flamme entière. Il est donc intéressant de mesurer les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés pour ces raisons.

#### 2.6.3.1 Effet de la pression sur les carburants purs

Les résultats des longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés pour différentes pressions initiales sont tracés en fonction de la richesse sur la Figure 2-22 pour le B0/E0 (a), le B100 (b) et le E100 (c). Pour l'ensemble de ces carburants, plus la richesse augmente, plus les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés diminuent, de même avec la pression. Donc, la flamme est moins sensible au taux d'étirement et est donc plus stable. Cependant certaines longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés atteignent des valeurs négatives, ce qui

correspond à des instabilités thermo-diffusives du front de flamme, qui mène à un début de cellularité de la flamme (Poinsot et Veynante (2001b)). Ce phénomène apparait pour les mélanges riches et des pressions supérieures à 0.1 MPa. Toutefois l'impact de la richesse est beaucoup moins explicite à la pression de 1.0 MPa, mais à ces conditions les mesures sont les plus délicates.

À noter que le B100, à 1.0 MPa, a un comportement opposé à ce qui a été trouvé précédemment dans la majorité des cas. La valeur de la longueur de Markstein du côté des gaz brûlés pour  $\varphi=0.8$  est négative, alors qu'elle devrait être positive. D'ailleurs, la flamme était stable sur ce point là.

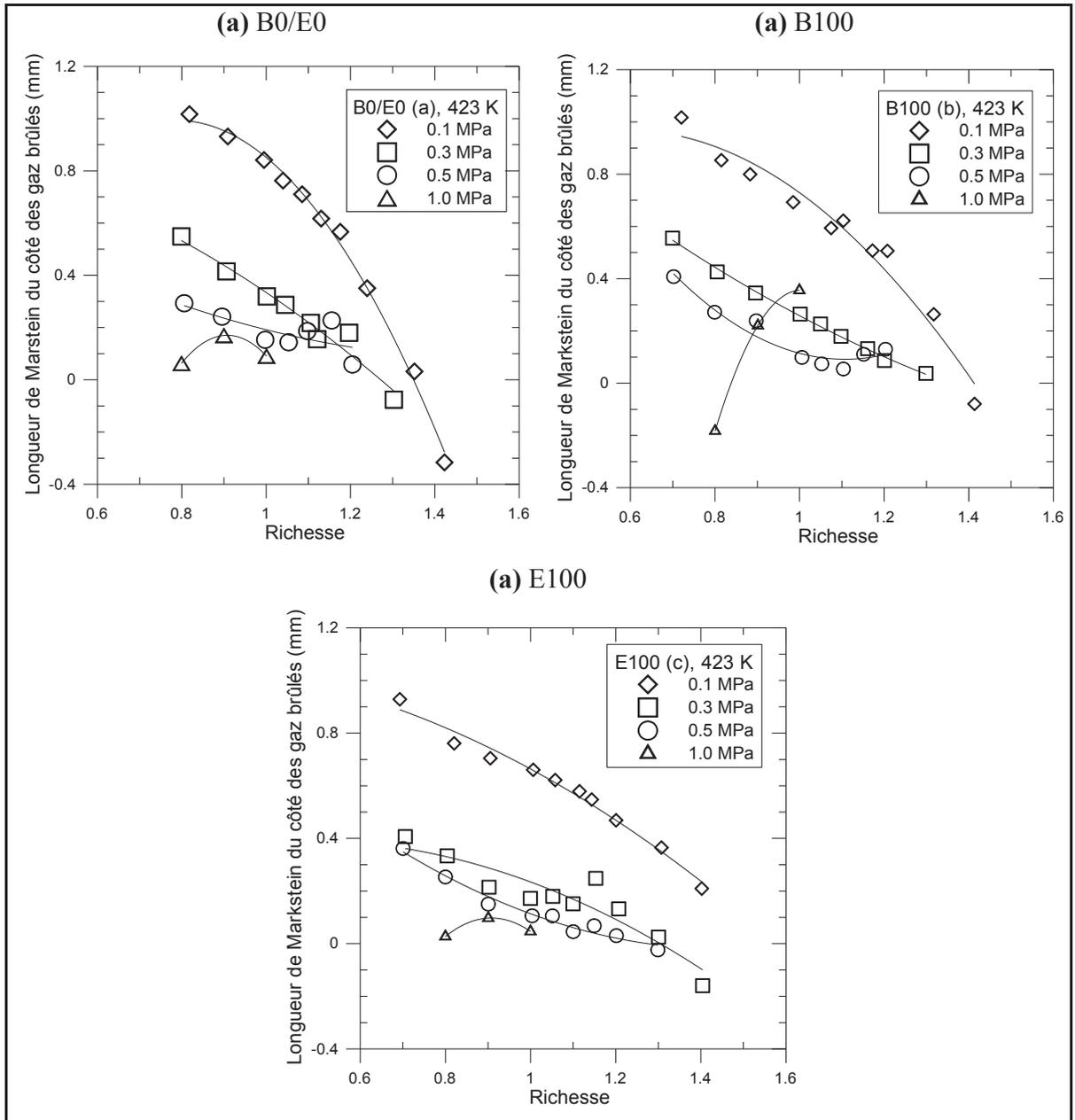


Figure 2-22: Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa pour B0/E0 (a), B100 (b) et E100 (c)

Les résultats des longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés pour les trois carburants purs (B0/E0, B100 et E100) sont tracés en fonction de la richesse sur la Figure 2-23 pour les quatre pressions initiales (0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)).

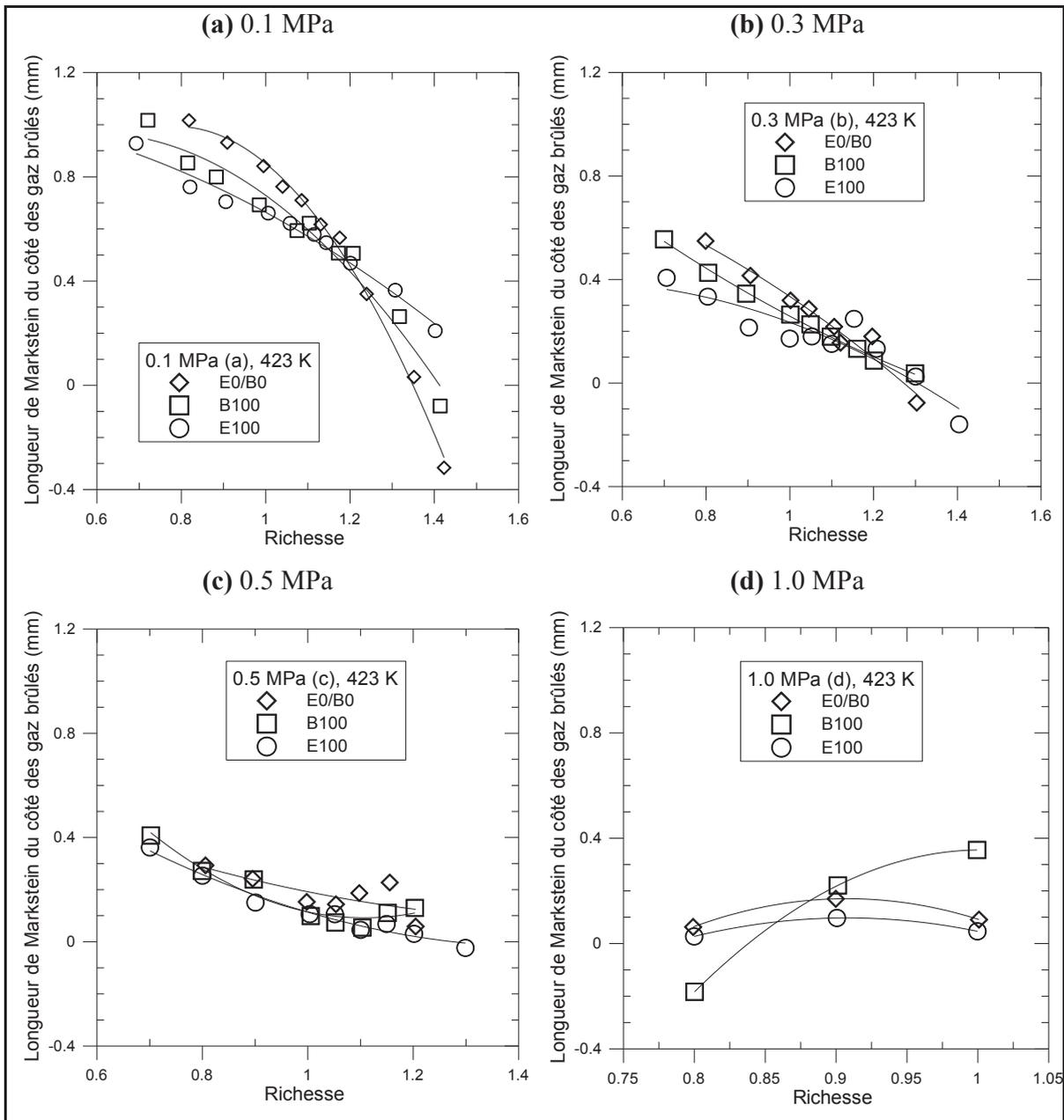


Figure 2-23: Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les carburants purs à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Pour une richesse donnée, l'éthanol a les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés les plus basses, devant le butanol et l'isooctane en particulier pour des pressions de 0.1 et 0.3 MPa. Au-delà, aucune tendance ne se dégage entre les carburants. Sur la majorité de la page

de richesse, les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés pour l'ensemble des carburants sont positives, ce qui indique que la flamme est stable sur le plan thermo-diffusif. Mais comme elles sont plus faibles pour les alcools, en particulier pour l'éthanol, que pour l'isooctane, ceci met en évidence que les alcools sont moins sensibles au taux d'étirement que l'isooctane. Cependant, une flamme étant toujours étirée, à partir d'un certain rayon, les instabilités hydrodynamiques deviendront prédominantes et la perturberont, engendrant alors de la celluarité. Dans le cas des mélanges très riches ( $\phi > 1.3$  à 0.1 et 0.3 MPa), les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés de l'isooctane deviennent négatives, tout comme le butanol, ce qui signifie que des instabilités thermo-diffusives apparaissent sur le front de flamme et engendrent la naissance de cellules. Pour ce qui est de l'éthanol, ces longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés restent positives, ce qui dénote une meilleure stabilité de flamme que le butanol et surtout que l'isooctane.

### **2.6.3.2 Effet de l'ajout d'alcool**

Les résultats des longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés sont tracés en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/alcool pour les quatre pressions initiales (0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)) sur les Figure 2-24 et Figure 2-25 respectivement pour le butanol et l'éthanol. Comme l'écart entre les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés pour le butanol et l'isooctane est plus faible que celui avec l'éthanol, on peut noter que l'impact de l'ajout de butanol dans l'isooctane est très faible, mais permet d'être moins sensible à l'étirement de la flamme en mélange pauvre. En contrepartie, l'ajout d'éthanol dans l'isooctane permet de stabiliser la flamme en mélange riche, d'un point de vue thermo-diffusif, et de la rendre moins dépendante à l'étirement en mélange pauvre, en particulier pour des pressions initiales de 0.1 (a) et 0.3 MPa (b).

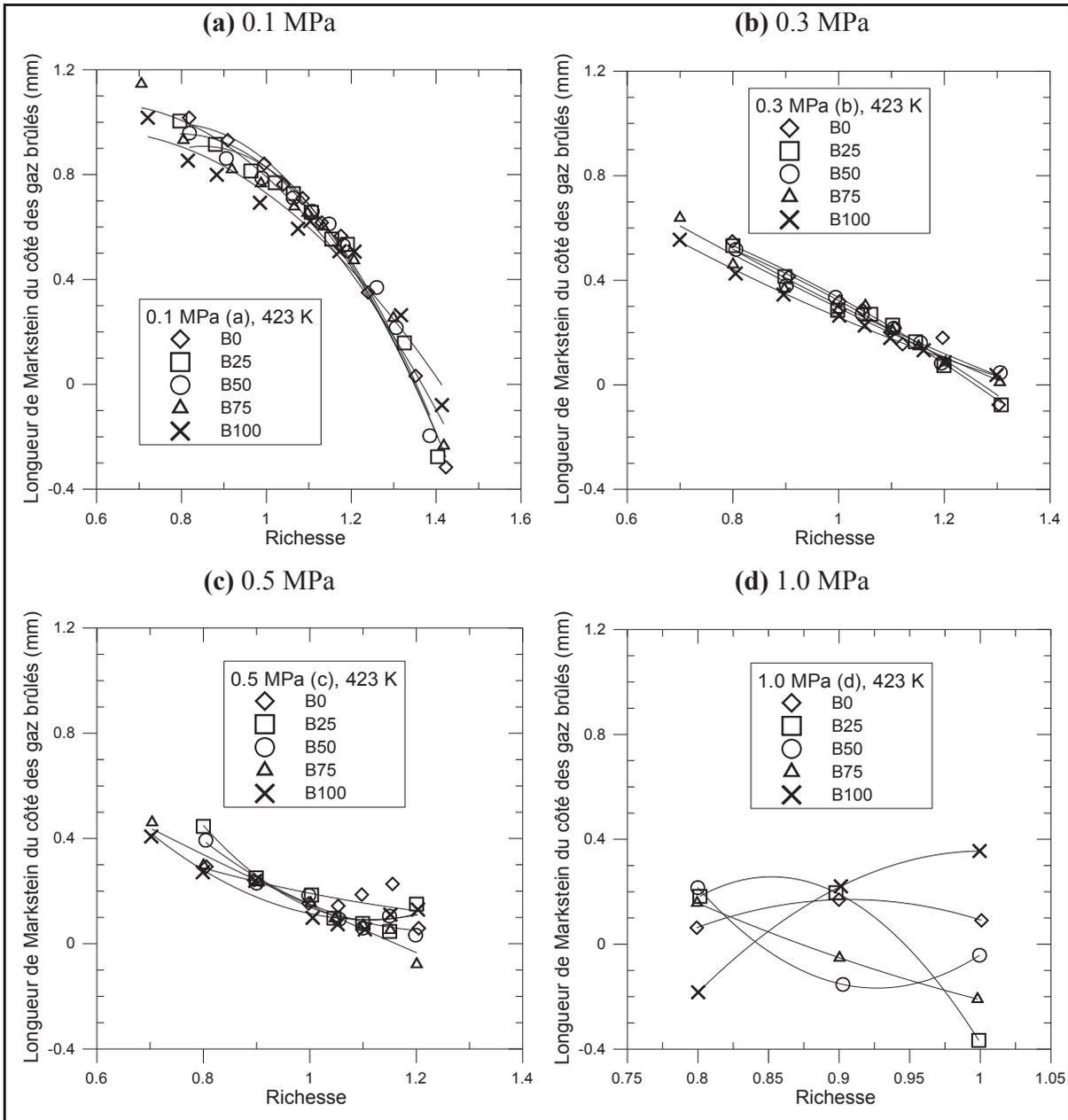


Figure 2-24: Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les mélanges iso-octane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

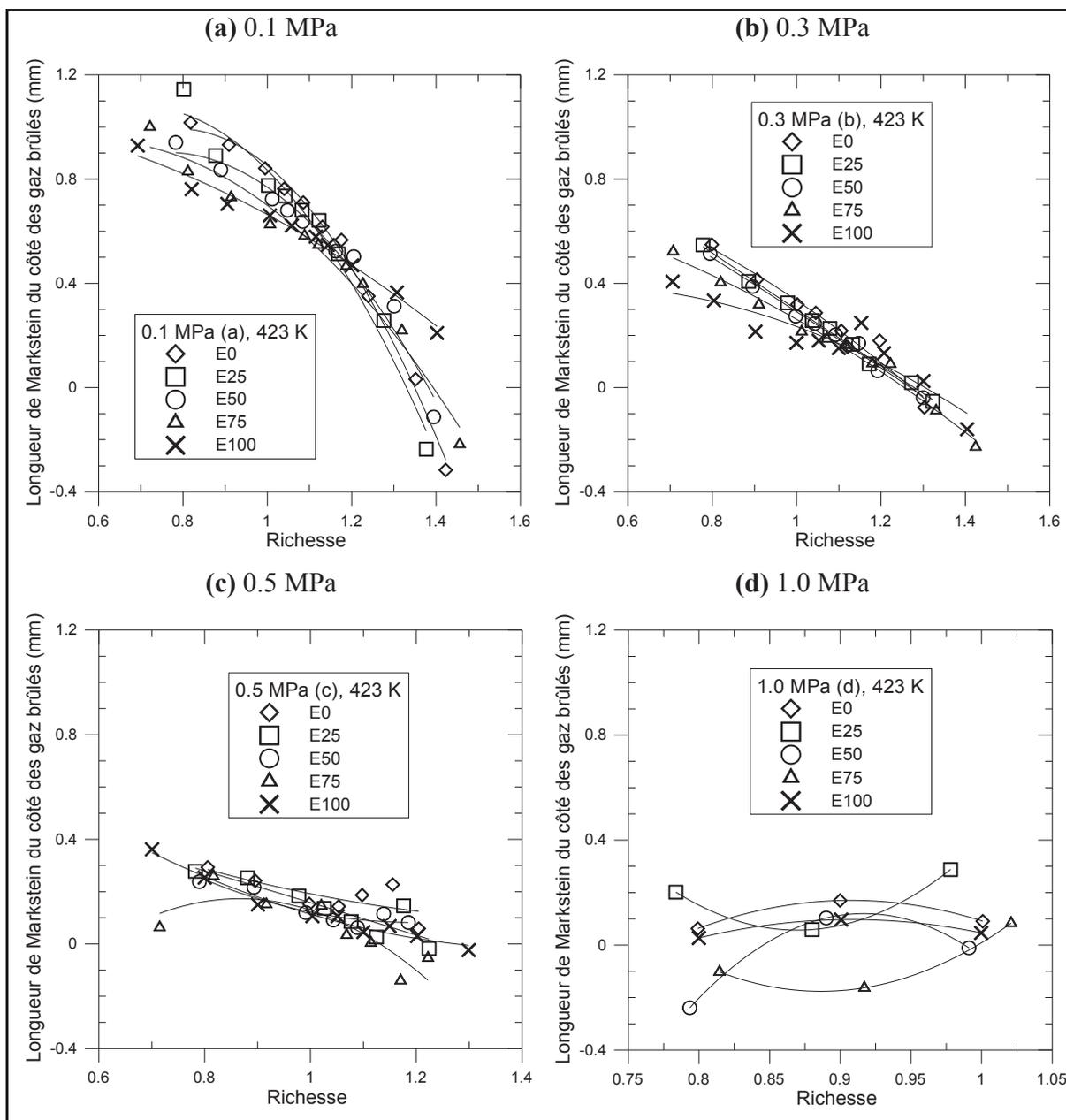


Figure 2-25: Longueur de Markstein du côté des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les mélanges iso-octane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

## 2.7 Proposition d'une corrélation

A partir de ces données expérimentales, une corrélation a été déterminée et permet de prédire la vitesse de combustion laminaire pour différents mélanges isooctane-éthanol et isooctane-butanol et ce, pour différentes richesses et pressions initiales.

### 2.7.1 Effet de la richesse et de la pression

La première partie de la corrélation qui ne dépend que de la richesse est basée sur la formulation de Metghalchi et Keck (1982c) :

$$S_{L,carb}^0(\phi) = (A_1 - A_2 \cdot (\phi - \phi_m)) \quad (2.51)$$

Puis, à cette équation, est incluse la dépendance à la pression :

$$S_{L,carb}^0(\phi, P_u) = S_{L,carb}^0(\phi) \cdot \left(\frac{P_u}{P_0}\right)^{\left(\frac{n}{2}-1\right)} \quad (2.52)$$

Avec  $P_0$  la pression de référence (0.1 MPa) et  $n$  le coefficient de la pression, qui représente aussi l'ordre global de la réaction.

Cette formulation a été introduite dans une routine Matlab, afin de minimiser l'erreur relative entre la corrélation et les données expérimentales pour les carburants purs, l'ensemble des richesses et des pressions initiales étudiées. Les vitesses de combustion laminaire expérimentales en fonction de la richesse ont été approximées par un polynôme d'ordre 4, pour que tous les points expérimentaux et ceux déterminés par la corrélation soient comparés avec les mêmes richesses. Les coefficients issus de ces calculs pour les trois carburants sont visibles dans le Tableau 2-18.

Tableau 2-18: Valeurs des coefficients de la corrélation en richesse et en pression

|                  | $A_1$  | $A_2$   | $\Phi_m$ | $n$   |
|------------------|--------|---------|----------|-------|
| <b>Isooctane</b> | 57.047 | 190.854 | 1.097    | 1.480 |
| <b>Butanol</b>   | 64.874 | 194.886 | 1.101    | 1.507 |
| <b>Éthanol</b>   | 68.793 | 200.243 | 1.100    | 1.432 |

Plusieurs observations peuvent être menées sur ces coefficients. Tout d'abord,  $\Phi_m$ , qui est la richesse où la vitesse est maximale, est identique pour les trois carburants purs, autour d'une valeur de 1.1. De plus, le coefficient  $A_1$ , qui correspond à la vitesse maximale pour la richesse  $\Phi_m$ , suit logiquement le classement des carburants pour les vitesses de combustion laminaire, soit dans l'ordre éthanol, butanol, isooctane. En ce qui concerne les coefficients pour la pression, on peut noter qu'ils sont sensiblement identiques pour les trois carburants. Même si les mesures n'ont été réalisées que jusqu'à une pression de 1.0 MPa, qui est inférieure à la pression obtenue dans un moteur à allumage commandé, on peut supposer que les vitesses de combustion laminaire évolueront de manière identique avec la pression même au-delà de 1.0 MPa pour les trois carburants.

### 2.7.2 Effet des mélanges

En ce qui concerne les mélanges, la corrélation, proposée dans cette étude, reprend le travail mené par Hirasawa *et al.* (2002b), puis par Ji et Egolfopoulos (2011h). Les différentes étapes pour arriver à leur formulation sont développées dans l'Annexe III.

La corrélation finale exposée en Annexe III à l'équation (III.16) est redonnée ici :

$$S_{L,mel}^0(\phi, P_u) = \exp\left(\chi_{C_8H_{18}} \cdot \ln\left(S_{L,C_8H_{18}}^0(\phi, P_u)\right) + \chi_{Alc} \cdot \ln\left(S_{L,Alc}^0(\phi, P_u)\right)\right) \quad (2.53)$$

L'indice *mel* signifiant qu'on est en présence d'un mélange de deux carburants, l'indice *Alc* signifiant que c'est un alcool (éthanol ou butanol) et l'indice  $C_8H_{18}$  signifiant que c'est de l'isooctane.

Avec  $\chi_i$  définit comme suit :

$$\chi_i = \frac{X_i \cdot N_i}{N_{mel}} \quad (2.54)$$

$i$  correspondant à l'un ou l'autre de deux carburants du mélange et  $\chi_{C_8H_{18}} + \chi_{Alc} = 1$

$N$  le nombre de moles de produits de la réaction de combustion du carburant pur.

A partir de la fraction volumique d'alcool présent dans l'isooctane et connaissant les masses molaires et les densités respectives de ces carburants, la fraction molaire de chaque carburant peut facilement en être déduite. Pour calculer les nombres de mole de produits pour chaque carburant et pour chaque pression, le programme EQUIL de Chemkin (Kee *et al.* (1989a)) a été utilisé avec le schéma cinétique d'oxydation du mélange isooctane/éthanol/butanol basé sur ceux d'un mélange de butanol et d'une essence modèle de Dagaut et Togbé (2008d), de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a).

Cette corrélation est valide sur une plage de richesse variant de 0.8 à 1.4, pour des pressions variant de 0.1 à 1.0 MPa, une température initiale de 423 K et pour les mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol.

### 2.7.3 Validation de la corrélation

Afin de valider la formulation de la vitesse de combustion laminaire proposée (2.53), les données sur les vitesses de combustion laminaire issues de la corrélation ont été comparées aux données expérimentales. Pour l'occasion, les vitesses de combustion laminaire expérimentales en fonction de la richesse, pour l'ensemble des mélanges et des pressions initiales, ont été approximées par un polynôme d'ordre 4, pour que tous les points expérimentaux et ceux déterminés par la corrélation soient comparés avec les mêmes richesses. L'ensemble de ces valeurs en fonction de la richesse pour des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) sont présentées sur les Figure 2-26 et Figure 2-27, respectivement pour les mélanges isooctane/butanol et isooctane/éthanol. Les données expérimentales sont représentées sur ces figures par des points et la corrélation par un trait continu.

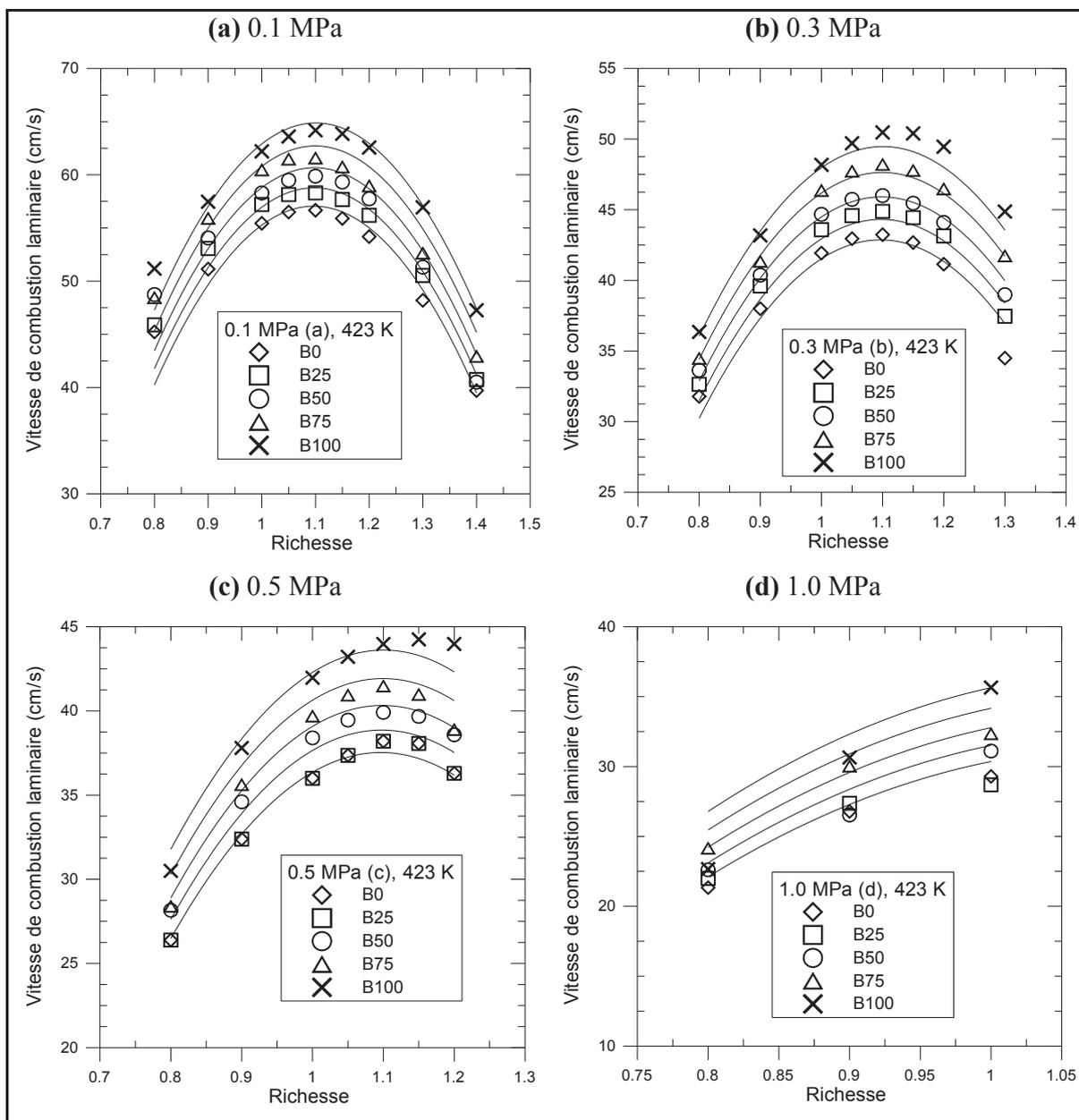


Figure 2-26: Comparisons sur les vitesses de combustion laminaire entre l'expérimental et la corrélation en fonction de la richesse pour les mélanges iso-octane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

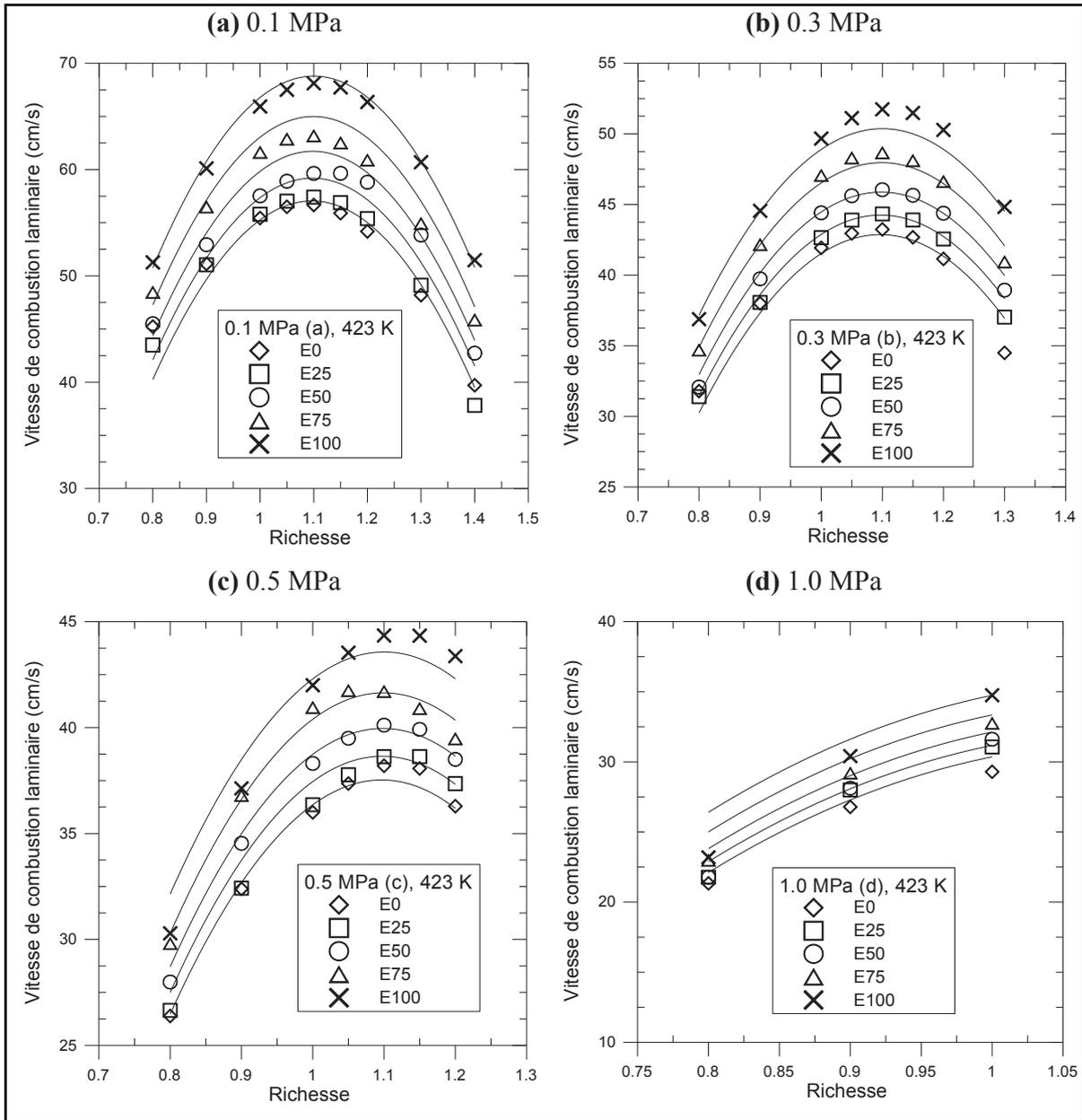


Figure 2-27: Comparaisons sur les vitesses de combustion laminaire entre l'expérimental et la corrélation en fonction de la richesse pour les mélanges isoctane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

De plus, les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs entre la corrélation et les données expérimentales pour les mélanges isoctane/butanol seuls, les mélanges

isooctane/éthanol seuls et les mélanges isooctane/alcool réunis sont présentés dans le Tableau 2-19. Les calculs d'écart relatif ont été effectués avec 270 points expérimentaux.

Tableau 2-19: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs entre la corrélation et les données expérimentales pour les mélanges isooctane/butanol seuls, les mélanges isooctane/éthanol seuls et les mélanges isooctane/alcool réunis

| <b>Écart relatif</b>     | <b>Moyenne</b> | <b>Minimum</b> | <b>Maximum</b> |
|--------------------------|----------------|----------------|----------------|
| <b>Butanol</b>           | 2.4%           | 0.0%           | 18.2%          |
| <b>Éthanol</b>           | 2.1%           | 0.0%           | 13.9%          |
| <b>Butanol + Éthanol</b> | 2.3%           | 0.0%           | 18.2%          |

Dans l'ensemble, une bonne concordance entre la corrélation et les données expérimentales est observée. Ceci est confirmé par les calculs d'écart relatif entre ces données expérimentales et la corrélation, puisque d'après le Tableau 2-19, la moyenne est de 2.3% avec un minimum de 0%. Toutefois, pour les mélanges isooctane/butanol, pour une pression de 0.1 MPa et  $\phi=0.8$ , la corrélation sous-estime les données expérimentales, ce qui est moins le cas pour les mélanges isooctane/éthanol, ce qui explique que la moyenne des écarts relatifs pour le butanol soit un peu plus élevée que celle de l'éthanol. De plus, en mélange pauvre pour des pressions de 0.5 et 1.0 MPa, que ce soit avec l'éthanol ou le butanol, la corrélation surestime, cette fois, les données expérimentales. C'est d'ailleurs à 1.0 MPa que les écarts les plus importants entre la corrélation et les données expérimentales sont observés : les maximums d'écart relatif présentés dans le Tableau 2-19 correspondent justement à 1.0 MPa. Ceci peut s'expliquer par le fait que la corrélation a été réglée sur les points expérimentaux des carburants purs en pression. Cependant, plus la pression augmente, moins il y a de données expérimentales pour régler la corrélation. De plus, la précision des données expérimentales à haute pression est moins bonne à cause de la prédominance des instabilités hydrodynamiques. Donc ceci explique pourquoi la corrélation est plus précise à faible pression, plus qu'à haute pression.

Enfin, les évolutions des vitesses de combustion laminaire issues de la corrélation en fonction de la concentration en alcool pour différentes richesses et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) sont tracées sur les Figure-A IV-1 et Figure-A IV-2 (en Annexe IV), respectivement pour les mélanges isooctane/butanol et isooctane/éthanol. L'évolution des vitesses de combustion laminaire en fonction de la concentration d'alcool avec le butanol est linéaire, tandis que celle avec l'éthanol ne l'est pas. Donc, la linéarité sur les vitesses de combustion laminaire observée avec l'ajout de butanol et la non-linéarité observée avec l'ajout d'éthanol sont bien représentées avec cette corrélation. Cependant, il faut reconnaître que dans le cas de l'éthanol, la non-linéarité obtenue via la corrélation est atténuée, par rapport à ce qui avait pu être constaté avec les résultats expérimentaux.

Au final, une nouvelle corrélation sur les vitesses de combustion laminaire pour les mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol en fonction de la pression et de la richesse a été proposée, avec un écart relatif moyen de 2.3 % entre celle-ci et les 270 points expérimentaux utilisés pour la valider.

## 2.8 Conclusion

Dans cette étude, des essais expérimentaux ont été réalisés dans une enceinte à volume constant, afin de caractériser les vitesses de combustion laminaire des mélanges isooctane/butanol en comparaison avec les mélanges isooctane/éthanol avec un pourcentage volumique de 0, 25, 50, 75 et 100% d'alcool dans l'isooctane. Ces essais ont été réalisés sur une plage de richesse de 0.7 à 1.4, pour des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa et une température initiale de 423 K.

Il a été remarqué que l'ajout d'alcool dans l'isooctane permettait d'augmenter la vitesse de combustion laminaire sur l'ensemble de la plage de richesse, l'éthanol ayant un impact plus fort que le butanol. Avec l'augmentation de la pression, les deux alcools ont des vitesses de combustion laminaire qui tendent à se rapprocher et finissent même par se superposer. Dans

le même temps, les vitesses de combustion laminaire de l'isooctane se rapprochent aussi des deux alcools avec la pression.

Comparativement à la littérature, il a été noté qu'à 0.1 MPa il y avait de bonne concordance entre des corrélations issues de la littérature et nos données expérimentales avec les carburants purs. Cependant, dès que la pression augmente, l'ensemble des corrélations s'éloignent les unes des autres et du même coup de nos données expérimentales.

En ce qui concerne les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés, l'ajout d'alcool, en particulier d'éthanol, dans l'isooctane permet de les diminuer, ce qui signifie que la flamme d'éthanol est moins sensible à l'étirement et aux instabilités thermo-diffusives. Cependant, pour des mélanges riches, les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés de l'isooctane et du butanol deviennent négatives, ce qui implique une dépendance forte des flammes aux instabilités thermo-diffusives, et donc une tendance à développer des cellules, ce qui n'est pas le cas de l'éthanol. Il faut noter que ceci a été observé pour des pressions de 0.1 et 0.3 MPa. Au-delà, aucune tendance ne se dégage réellement.

Enfin, à l'aide des données expérimentales obtenues, une corrélation sur les vitesses de combustion laminaire des mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol a été proposée. Cette corrélation est valide sur une plage de richesse variant de 0.8 à 1.4 et pour des pressions variant de 0.1 à 1.0 MPa. L'erreur moyenne entre cette corrélation et nos données expérimentales est de 2.3%, ce qui confirme la bonne qualité de cette corrélation.



## CHAPITRE 3

### ÉTUDE NUMÉRIQUE SUR LES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE

#### 3.1 Introduction

Dans ce chapitre, une étude de simulation sur les vitesses de combustion laminaire est présentée. Les calculs effectués ont porté sur les mélanges isooctane/alcools (0, 25, 50, 75 et 100% en volume d'alcool dans l'isooctane) et ont été effectués à l'aide du logiciel Cantera (2003a). Les simulations ont été réalisées pour des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa, une température initiale de 423 K et pour un balayage de richesse allant de 0.6 à 1.4. Le schéma cinétique d'oxydation qui a été utilisé, non publié à l'heure actuelle, comprend 228 espèces et 1737 réactions et a été développé par P. Dagaut (ICARE). Il inclut l'isooctane, l'éthanol et le butanol comme carburant, ce qui va permettre de réaliser les mélanges isooctane/alcools. Les données numériques des vitesses de combustion laminaire seront comparées aux résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 2.

#### 3.2 Description du schéma cinétique

Le schéma cinétique d'oxydation de mélanges d'isooctane, d'éthanol et de butanol (qui sera désormais appelé tri-espèces) utilisé comprend la cinétique chimique d'oxydation de l'isooctane, de l'éthanol et du butanol, pour un total de 228 espèces et 1737 réactions. Ce schéma cinétique d'oxydation est une compilation des mécanismes d'oxydation d'un mélange de butanol et d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) de Dagaut et Togbé (2008d), de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a). Il contient différents sous-mécanismes : C0-C4, mono-aromatiques, n-paraffines, 1-C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>, naphènes, iso-paraffines, isooctane, ETBE, éthanol, butanol et des réactions pression-dépendantes. De plus, il faut noter que pour permettre l'étude en pression, certaines réactions, qui sont dépendantes de la pression, ont été modifiées en conséquence pour chaque pression étudiée, afin de bien prendre en compte l'influence de la pression. A

chaque changement de pression, les coefficients liés à ces réactions dépendantes de la pression ont été ajustés selon les recommandations que nous avons reçues.

Des essais expérimentaux dans une enceinte sur la vitesse de combustion laminaire ont été réalisés sur une plage de richesse allant de 0.7 à 1.4 par Sarathy *et al.* (2009j), pour une pression initiale de 0.089 MPa et une température initiale de 350 K, dans le but de valider le sous-mécanisme d'oxydation du butanol. Une bonne concordance entre les simulations et les données expérimentales avait été trouvée. La vitesse de combustion laminaire maximale a été trouvée autour d'une richesse de 1.1, dans les deux cas. Pour valider le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol, Leplat *et al.* (2010g) ont comparé des simulations sur les vitesses de combustion laminaire pour des pressions allant de 0.1 à 1.0 MPa, des températures allant de 300 à 453 K et sur une plage de richesse allant de 0.7 à 1.4 avec des données expérimentales issues de la littérature (Bradley *et al.* (2009b) et Liao *et al.* (2007g)). Malgré une légère sous-estimation des simulations par rapport aux données de la littérature, globalement une bonne concordance a été rencontrée. On remarque d'ailleurs cette sous-estimation du modèle par rapport aux résultats de Bradley *et al.* en mélange riche avec l'augmentation de la pression. Enfin, la vitesse de combustion laminaire maximale se trouve toujours à la richesse de 1.1 quelque soit la température et la pression initiales. Quant à l'isooctane, pour valider le sous-mécanisme d'oxydation de Curran *et al.* (2002a), les vitesses de combustion laminaire déterminées expérimentalement par Davis et Law (1998d) avec un brûleur de double-flammes à contre-courant sur une plage de richesse de 0.7 à 1.4 et une pression de 0.1 MPa ont été utilisées. En mélange pauvre, les simulations et les données expérimentales sont relativement proches, malgré une légère sous-estimation des simulations. Cependant, la vitesse de combustion laminaire maximale se situe pour les deux cas à une richesse de 1.1. Bien qu'avec l'augmentation de la richesse, l'écart entre les simulations et les données expérimentales augmentent, avec un écart maximal de 5 cm/s, on peut considérer que l'approche des données expérimentales par les simulations permet de valider le sous-mécanisme d'oxydation de l'isooctane. Au final, les validations de ces sous-mécanismes d'oxydation expliquent et justifient en partie leurs utilisations dans le schéma d'oxydation tri-espèces.

Les paramètres de convergence du calcul généré dans Cantera, permettant le calcul de la vitesse de combustion laminaire, sont présentés brièvement en Annexe V. Une étude est aussi menée, pour les trois carburants purs, afin de connaître leur impact sur la précision des résultats, ainsi que sur le temps CPU, dans le but de mieux choisir ces paramètres pour l'ensemble de nos simulations.

### **3.3 Résultats**

Dans un premier temps, les résultats sur les vitesses de combustion laminaire avec les carburants purs vont être analysés pour une température initiale du mélange de 423K et ce pour différentes pressions (0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa) et richesses (0.6 à 1.4). Pour la suite, les mélanges isooctane/éthanol, et les mélanges isooctane/butanol (0, 25, 50, 75 et 100 % d'alcool en volume dans l'isooctane) seront traités aux mêmes conditions. Pour chaque simulation, les valeurs de Slope et Curv sont de 0.1

Sur les figures, les labels « exp » correspondent aux données expérimentales tandis que les labels « num » correspondent aux données des simulations. Comme lors des essais expérimentaux, il n'a pas été réalisé de simulations au-delà de richesses supérieures à 1.4. Cependant, en mélange pauvre, le schéma cinétique d'oxydation du mélange isooctane/éthanol/butanol a été testé sur des richesses plus faibles que celles réalisées en expérimental, puisque des simulations ont convergé pour des richesses allant jusqu'à 0.6 dans certains cas.

#### **3.3.1 Carburants purs**

Sur les Figure 3-1, les vitesses de combustion laminaire issues des simulations et essais expérimentaux en fonction de la richesse sont tracées pour les carburants purs pour les pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Globalement, les vitesses de combustion laminaire issues des simulations sont toujours inférieures à celles

issus des données expérimentales, et on retrouve la forme en cloche si typique de l'évolution de la vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse.

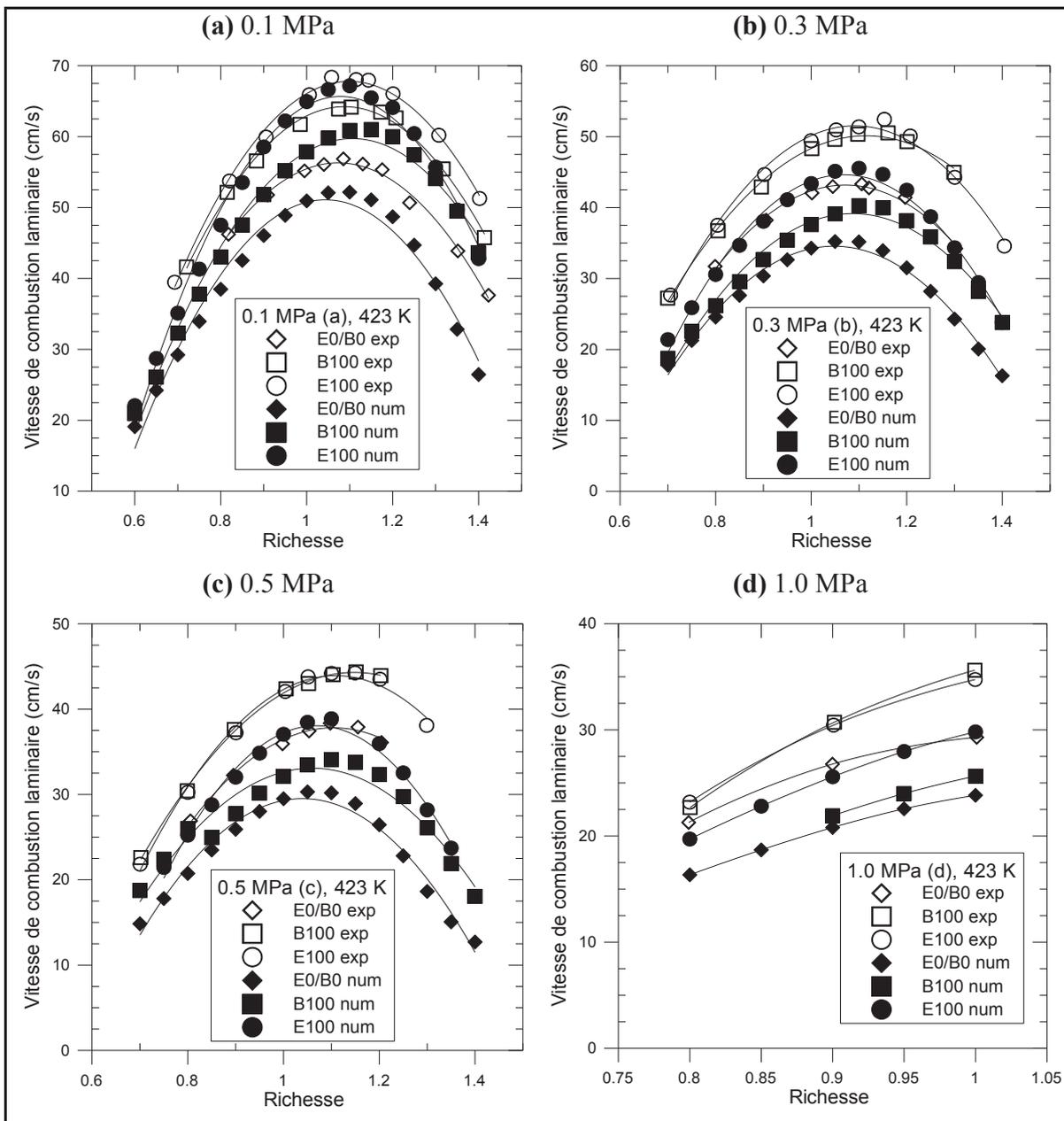


Figure 3-1: Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les carburants purs à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Dans le détail, sur la Figure 3-1 (a), pour une pression initiale de 0.1 MPa, les simulations des vitesses de combustion laminaire de l'éthanol sont supérieures à celles du butanol, elles-mêmes supérieures à celles de l'isooctane, ce qui est cohérent avec l'expérimental.

Les vitesses de combustion laminaire de l'éthanol sont relativement proches entre l'expérimental et les simulations, en particulier autour de la richesse donnant la vitesse de combustion laminaire maximale ( $\varphi=1.1$ ). Mais, en s'éloignant de ce point vers les mélanges pauvres et riches, les écarts augmentent. En revanche, en ce qui concerne l'isooctane, les écarts sont assez importants surtout en mélange riche, mais la vitesse de combustion laminaire maximale se trouve à une richesse identique ( $\varphi=1.1$ ) entre les résultats issus des simulations et de l'expérimental. Enfin, pour le butanol, une tendance opposée à celle de l'isooctane est rencontrée, puisque les écarts entre numérique et expérimental sont majoritairement en mélange pauvre. De plus, les valeurs numériques pour le butanol sont proches de celle de l'isooctane en mélange pauvre, tandis qu'elles sont proches de celles de l'éthanol en mélange riche, dû à un décalage en richesse sur ce carburant. La vitesse de combustion laminaire maximale se trouve à une richesse de 1.15 au lieu de 1.1, pour les données expérimentales.

Avec la montée en pression (Figure 3-1 (b), (c) et (d)), les mêmes tendances que précédemment se retrouvent, excepté que pour le butanol la vitesse de combustion laminaire maximale se trouve maintenant aux alentours d'une richesse de 1.1 comme les données expérimentales et comme les autres carburants. De plus, à 0.3 et 0.5 MPa, les simulations avec le butanol sont proches de celles de l'éthanol en mélange riche et proches de celles de l'isooctane en mélange pauvre. Cependant à 0.5 MPa, pour  $\varphi < 0.8$ , les simulations du butanol se superposent à celles de l'éthanol, alors qu'on s'attendait à ce qu'elles soient proches de l'isooctane comme à 0.1 et 0.3 MPa. Ce comportement étrange du butanol en mélange pauvre à 0.5 MPa semble indiquer un problème important dans la prédiction des vitesses de combustion laminaire de ce carburant avec le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces en ce qui concerne le butanol. Globalement, les écarts entre le numérique et l'expérimental se creusent, même pour l'éthanol. De plus, les résultats expérimentaux avaient mis en évidence un rapprochement des deux alcools en termes de vitesses de combustion laminaire avec

l'effet de la pression initiale, mais ce constat ne se retrouve pas sur les résultats numériques, bien qu'il soit visible pour l'isooctane et l'éthanol.

Enfin, avec l'augmentation de la pression, les simulations en mélange pauvre sont de plus en plus difficiles. La richesse atteinte à 0.1 MPa est 0.6 alors qu'à 1.0 MPa, seule une richesse de 0.8 est obtenue, sauf pour le butanol où une richesse de 0.9 a été atteinte.

Sur la Figure 3-1 (c), pour le Butanol, on constate un décalage, du côté des mélanges pauvres, entre les derniers points de richesse (0.7, 0.75 et 0.8) et le reste de la courbe de richesse. Ceci peut s'expliquer par la manière utilisée pour obtenir ces trois derniers points. Il existe deux manières différentes d'atteindre ces points :

- Soit à partir de la richesse précédente mais pour un même carburant. Ici, on utilise les résultats du point de richesse 0.85 pour la richesse 0.8 et ainsi de suite.
- Soit à partir d'un autre carburant, mais pour une même richesse. Ici, on utilise l'isooctane pur à la richesse 0.85, qu'on avait obtenu avant, et on ajoute du butanol petit à petit pour arriver au butanol pur.

Habituellement, quelque soit la méthode utilisée, les résultats obtenus avec les deux méthodes étaient identiques. Or dans ce cas là, la première méthode à partir de la richesse précédente, n'a pas fonctionné, et la deuxième méthode a donné des résultats qui surestiment clairement les résultats que l'on aurait normalement du obtenir, puisqu'ils se superposent avec les résultats de l'éthanol. Ce comportement semble indiquer un problème important dans la prédiction des vitesses de combustion laminaire avec le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces en ce qui concerne le butanol.

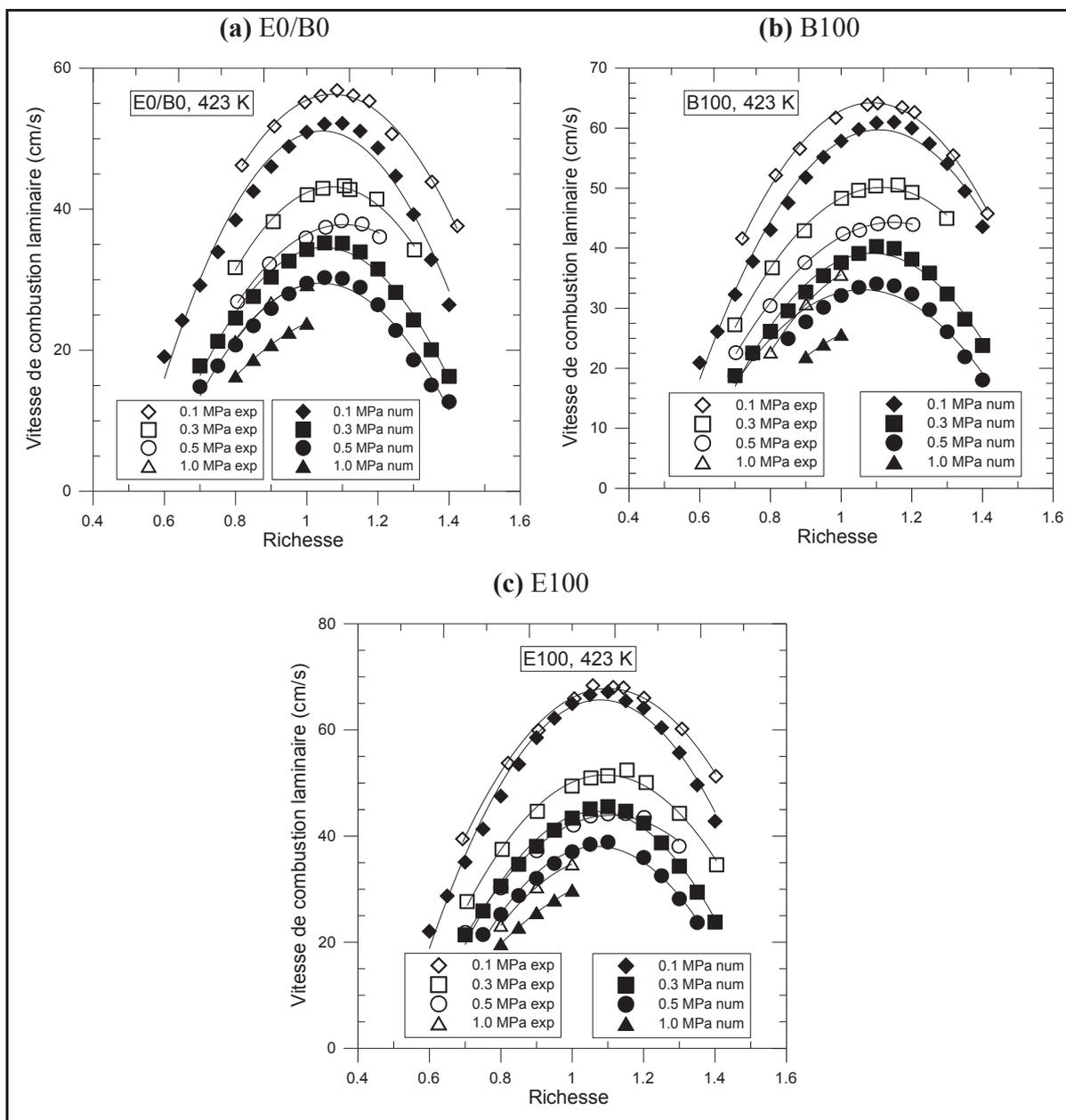


Figure 3-2: Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa pour le E0/B0 (a), le B100 (b) et le E100 (c)

Tableau 3-1: Écarts relatifs entre les résultats des simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire pour les carburants purs

| Pression | 0.1 MPa   |        |        | 0.3 MPa |        |        |
|----------|-----------|--------|--------|---------|--------|--------|
|          | Carburant | E0/B0  | B100   | E100    | E0/B0  | B100   |
| Minimum  | 7.82%     | 4.10%  | 1.29%  | 18.00%  | 20.19% | 11.73% |
| Maximum  | 33.40%    | 15.90% | 16.87% | 29.59%  | 28.06% | 23.39% |
| Moyenne  | 13.77%    | 7.44%  | 5.23%  | 21.65%  | 23.70% | 15.31% |

| Pression | 0.5 MPa   |        |        | 1.0 MPa |        |        |
|----------|-----------|--------|--------|---------|--------|--------|
|          | Carburant | E0/B0  | B100   | E100    | E0/B0  | B100   |
| Minimum  | 18.06%    | 14.71% | 11.68% | 18.64%  | 28.08% | 14.22% |
| Maximum  | 27.12%    | 27.99% | 17.09% | 23.49%  | 28.51% | 16.02% |
| Moyenne  | 21.15%    | 23.67% | 13.48% | 21.69%  | 28.33% | 15.25% |

Afin de confirmer nos premières constatations sur les différences entre les résultats numériques et expérimentaux, le Tableau 3-1 donne les écarts relatifs sur les vitesses de combustion laminaire entre les simulations et les données expérimentales pour les carburants purs. Comme observé précédemment, l'écart relatif moyen pour l'éthanol est le plus faible parmi les trois carburants, puis vient le butanol et enfin l'isooctane à 0.1 MPa. Cet ordre se retrouve aussi dans l'évolution des minimums et maximums des écarts relatifs. Cependant avec la montée en pression jusqu'à 1.0 MPa, les écarts relatifs augmentent fortement avec les trois carburants purs. Mais les écarts relatifs pour l'éthanol sont toujours les plus faibles parmi les trois carburants. En revanche, les écarts du butanol et l'isooctane sont sensiblement identiques, sauf à 1.0 MPa, où celui du butanol a fortement augmenté comparativement à 0.5 MPa.

Pour expliquer ces importants écarts entre les données issues des simulations et de l'expérimental, il faut s'intéresser aux domaines de validité des sous-mécanismes d'oxydation de l'isooctane, de l'éthanol et du butanol, exposés plus haut. Pour l'isooctane, le sous-mécanisme d'oxydation a été validé en vitesse de combustion laminaire pour une pression de 0.1 MPa, tout comme pour le butanol. De plus, dans le cas du butanol, une bonne

concordance entre les simulations sur le sous-mécanisme d'oxydation et des données expérimentales avait été trouvée, alors que pour l'isooctane, les simulations avec le sous-mécanisme d'oxydation sous-estimaient en permanence les données expérimentales. Ceci peut expliquer les fortes différences rencontrées entre les simulations et l'expérimental à 0.1 MPa et celles à 0.3, 0.5 et 1.0 MPa. Car au final, les écarts relatifs trouvés à 0.1 MPa sont tout à fait acceptables pour le butanol, moins pour l'isooctane. Et avec la montée en pression, les écarts relatifs deviennent les plus importants et les moins acceptables. Cependant, ceci n'explique pas pourquoi un décalage en richesse a été observé à 0.1 MPa avec le butanol, alors que les simulations sur le sous-mécanisme d'oxydation n'en avaient montré aucune. En ce qui concerne l'éthanol, le sous-mécanisme d'oxydation a été validé pour différentes pressions initiales (jusqu'à 1.0 MPa). Ceci explique pourquoi même en pression l'éthanol présente des écarts relatifs les plus faibles entre les simulations et l'expérimental. Cependant, comme remarqué dans la validation du sous-mécanisme d'oxydation, les simulations sont toujours inférieures aux données expérimentales. Il est donc surprenant que l'écart à 0.1 MPa soit très faible, et qu'il soit subitement augmenté avec l'augmentation de la pression initiale. Il est alors possible de penser que les réactions pression-dépendantes, communes aux trois carburants, ont une influence trop importante dans le mécanisme d'oxydation tri-espèces.

Au final, pour une pression de 0.1 MPa les valeurs numériques de l'éthanol, voire du butanol concordent avec les données expérimentales. Par contre, l'augmentation de la pression entraîne des écarts importants, mais de moindre importance avec l'éthanol. Ceci est dû au fait que le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol a été validé sur une plus grande plage de pression, ce qui n'est pas le cas du butanol. En ce qui concerne l'isooctane, dès 0.1 MPa, les écarts sont déjà assez grands et cela empire avec la montée en pression. Ceci s'explique aussi par la non-validation du sous-mécanisme de l'isooctane en pression. De plus, malgré une validation en pression pour le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol, des écarts assez conséquents ont été trouvés, ce qui laisse à penser que la dépendance des réactions à la pression n'est pas correctement prise en compte par la cinétique chimique.

Donc les simulations avec le schéma d'oxydation tri-espèces n'arrivent pas à prédire correctement les vitesses de combustion laminaire expérimentales des carburants purs à 423 K pour les différentes pressions étudiées, et les sous-estime dans tous les cas de figures.

### 3.3.2 Mélanges isooctane/éthanol

Malgré les écarts identifiés avec les mélanges purs, les simulations pour les vitesses de combustion laminaire pour les mélanges ont été réalisées. La Figure 3-3 présente les vitesses de combustion laminaire issues des simulations et essais expérimentaux en fonction de la richesse pour le E0, le E50 et le E100 à des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Les données pour le E25 et le E75 ne sont pas présentées afin d'éviter d'alourdir inutilement les graphiques, mais leurs tendances sont similaires au E50.

De plus, il est possible de voir en Annexe VI sur la Figure-A VI-1 les vitesses de combustion laminaire issues des simulations en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/éthanol pour les pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Sur la courbe à 1.0 MPa, les simulations n'ont pas convergées pour le E50 et le E75 à partir respectivement de la richesse 0.95 et 0.9 jusqu'à 0.8. Ceci met en évidence la difficulté pour converger des simulations avec le schéma d'oxydation tri-espèces pour les hautes pressions et les mélanges isooctane/éthanol.

Globalement les tendances observées à partir des données expérimentales sont reproduites, toutefois vu les résultats obtenus sur les carburants purs, les simulations avec le E50 sous-estiment les données expérimentales dès 0.1 MPa. Cet écart augmente avec l'augmentation de la pression. Ceci est principalement dû à la validation du sous-mécanisme d'oxydation de l'isooctane moins précise à 0.1 MPa et inexistante avec l'augmentation de la pression. De plus, le fait que les écarts entre les simulations et l'expérimental augmentent avec la pression pour l'éthanol ne fait qu'accroître les écarts sur le E50 en pression.

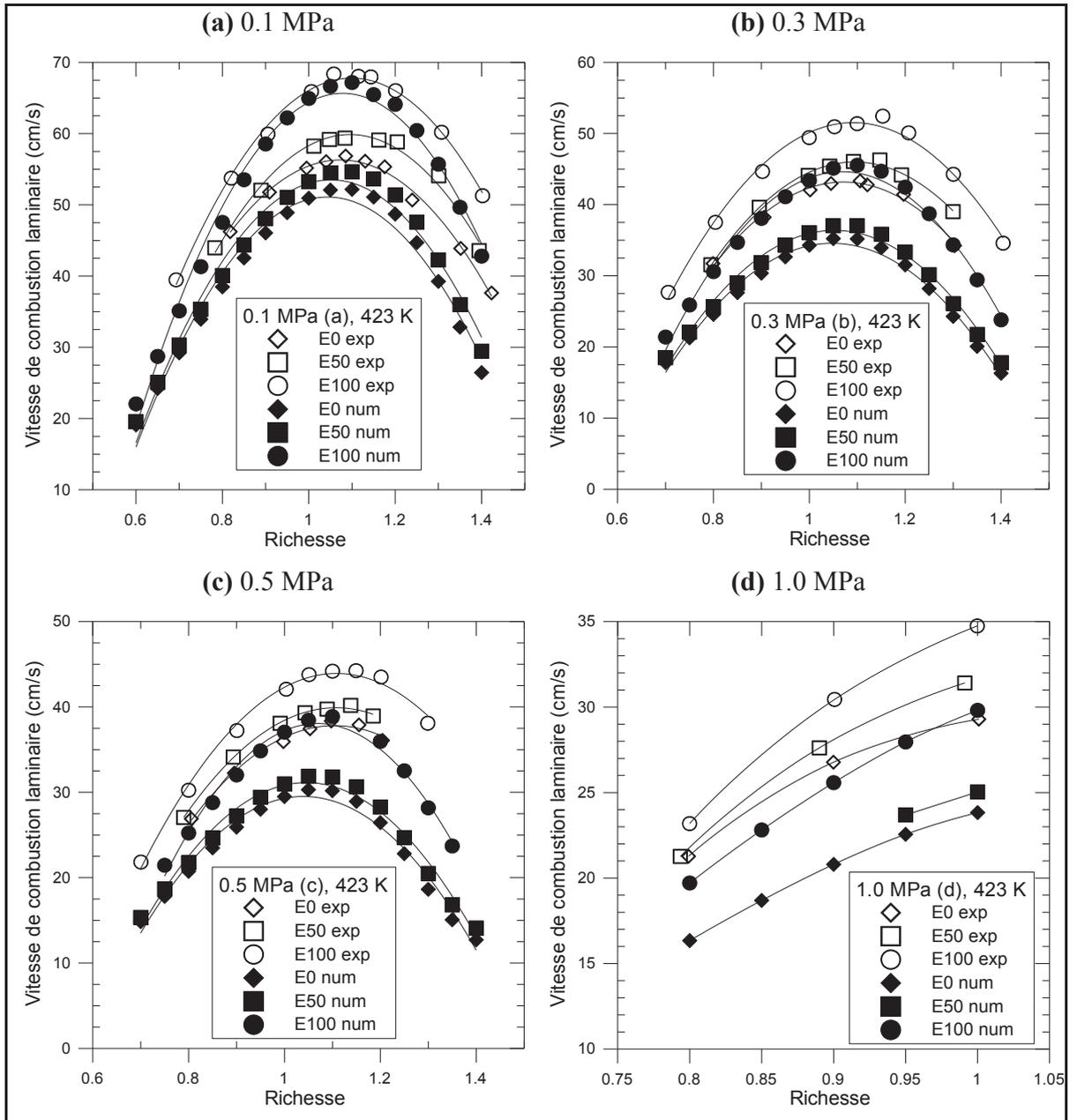


Figure 3-3 : Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour le E0, le E50 et le E100 à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Les écarts relatifs entre les résultats expérimentaux et les simulations de vitesses de combustion laminaire pour les mélanges iso-octane/éthanol, présentés sur le Tableau-A VI-1 (Annexe VI) mettent en évidence que les écarts sur les mélanges E25, E50 et E75 sont

similaires à ceux du E0 pour l'ensemble des pressions étudiées. Donc, ce sont les écarts entre les simulations et l'expérimental sur l'isooctane qui entraînent celles sur les mélanges.

La Figure-A VI-2 en Annexe VI présente l'évolution des vitesses de combustion laminaire pour les simulations et les données expérimentales en fonction de la concentration en éthanol pour différentes richesses et pour des pressions initiales respectivement de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Ces résultats permettent de conclure que l'ajout d'éthanol engendre une augmentation de la vitesse de combustion laminaire, de façon non-linéaire, comme observé avec les essais expérimentalement. Ceci indique que le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces reproduit correctement cet effet. Cependant, avec l'augmentation de la pression initiale, cette non-linéarité s'atténue. Ceci permet de justifier le fait que l'isooctane a un impact important sur les écarts observés entre les simulations et l'expérimental, même pour un fort taux d'éthanol dans le mélange isooctane/éthanol.

### 3.3.3 Mélanges isooctane/butanol

Sur la Figure 3-4, les vitesses de combustion laminaire issues des simulations et essais expérimentaux sont tracées en fonction de la richesse pour le B0, le B50 et le B100 à des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Les données pour le B25 et le B75 ne sont pas présentées afin d'éviter d'alourdir inutilement les graphiques, mais leurs tendances sont similaires au B50.

De plus, il est possible de voir en Annexe VI sur la Figure-A VI-3 les vitesses de combustion laminaire issues des simulations en fonction de la richesse pour les mélanges isooctane/butanol pour les pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Sur la courbe à 1.0 MPa, les simulations n'ont pas convergées pour le B75 et le B100 à partir de la richesse de 0.9 jusqu'à 0.8. Ceci met en évidence la difficulté de convergence des simulations avec le schéma d'oxydation tri-espèces pour les hautes pressions et les mélanges isooctane/butanol. De plus, à 0.5 MPa, les simulations pour le B100 et aussi le B50 pour des richesses inférieures à 0.8 sont anormalement hautes. On peut aussi

le constater sur la Figure 3-4 (c). On retrouve là ce qu'on a vu précédemment pour le butanol sur la Figure 3-1 (c).

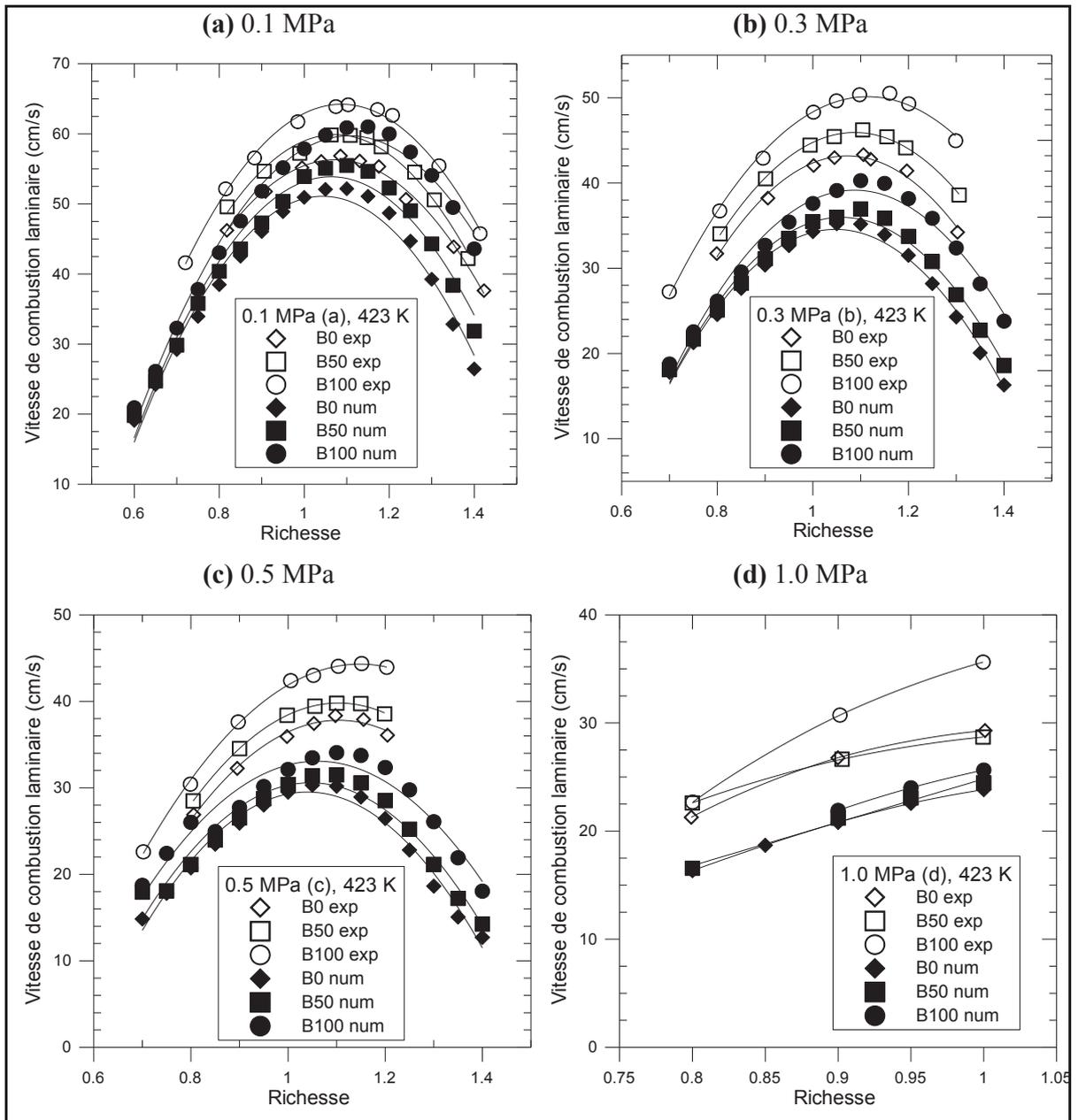


Figure 3-4: Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour le B0, le B50 et le B100 à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Les mêmes tendances entre l'expérimental et les simulations sont observables. En mélange pauvre, comme pour les mélanges isooctane/éthanol, les simulations sur les mélanges isooctane/butanol tendent à se rapprocher comme pour l'expérimental, alors qu'en mélange riche il n'y a aucun rapprochement. De plus, en mélange riche, (mais de manière moins flagrante comparé aux mélanges isooctane/éthanol) on retrouve une décroissance plus rapide des vitesses de combustion laminaire dans le cas des simulations par rapport à l'expérimental.

Enfin, comme il était attendu au vu des résultats obtenus sur les carburants purs, les simulations avec le B50 sous-estiment les données expérimentales dès 0.1 MPa. Et cet écart augmente avec l'augmentation de la pression. Ceci est dû aux écarts notés avec l'isooctane et entre les simulations et l'expérimental dès 0.1 MPa, comme expliqué précédemment pour les mélanges isooctane/éthanol. De plus, même si les écarts à 0.1 MPa ne sont pas trop importants dans le cas du butanol, ils s'accroissent avec l'augmentation de la pression, ce qui ne fait qu'aggraver les écarts pour le B50.

Ceci est confirmé en observant les écarts relatifs entre les résultats expérimentaux et les simulations de vitesses de combustion laminaire pour les mélanges isooctane/butanol (Tableau-A VI-2, Annexe VI). A 0.1 MPa, l'écart relatif diminue avec l'ajout de butanol. Donc à 0.1 MPa, les écarts dus à l'isooctane arrivent à être compensés pour les mélanges à fort taux de butanol. Cependant, pour des pressions supérieures, comme les écarts entre les simulations et l'expérimental augmentent fortement pour le butanol et deviennent supérieurs à ceux pour l'isooctane, les écarts relatifs augmentent légèrement avec l'ajout de butanol, en particulier à 1.0 MPa. Donc, à 0.1 MPa, ce sont les écarts entre les simulations et l'expérimental sur l'isooctane qui entraînent celles sur les mélanges. Puis, pour de plus hautes pressions, ce sont les écarts sur les deux carburants qui impactent celles sur les mélanges.

La Figure-A VI-4 (Annexe VI) présente l'évolution des vitesses de combustion laminaire pour les simulations et les données expérimentales en fonction de la concentration en butanol

pour différentes richesses et pressions initiales respectivement de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d). Contrairement à l'éthanol, l'ajout de butanol engendre une augmentation linéaire de la vitesse de combustion laminaire. Donc malgré l'erreur observée sur la prédiction de la vitesse combustion laminaire du schéma cinétique d'oxydation tri-espèces, il a toutefois la capacité de reproduire l'augmentation linéaire de la vitesse de combustion laminaire avec l'ajout de butanol.

### 3.3.4 Conclusion

Au final, des simulations pour les mélanges isooctane/butanol et isooctane/éthanol ont été réalisées sous Cantera pour une plage de richesse de 0.6 à 1.4, de pression initiale de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa et une température initiale de 423 K. Le schéma cinétique d'oxydation utilisé regroupe un mélange isooctane/éthanol/butanol et est une compilation des mécanismes d'oxydation d'un mélange de butanol et d'une essence modèle de Dagaut et Togbé (2008d), de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a).

Il a été observé que les simulations reproduisaient bien la forme en cloche typique de l'évolution des vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse et ceci pour toutes les pressions initiales ainsi que la valeur de la richesse pour la vitesse de combustion laminaire maximale (autour 1.1 pour l'ensemble des mélanges et pour toutes les pressions comme pour l'expérimental, excepté pour les mélanges isooctane/butanol à 0.1 MPa). En outre, les vitesses de combustion laminaire de l'éthanol calculées sont plus importantes, que celles du butanol, elles-mêmes plus rapides que celles de l'isooctane. Ceci est cohérent avec l'expérimental à 0.1 MPa. Mais avec l'augmentation de pression, les simulations pour les deux alcools ne donnent pas de valeurs de vitesse proches, contrairement à ce qui a été remarqué avec l'expérimental. Par contre, le rapprochement entre les vitesses de l'isooctane et celles des alcools est retrouvé, numériquement et expérimentalement, avec l'augmentation de la pression.

Il a aussi été mis en évidence que le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces proposé sous-estime dans tous les cas les vitesses de combustion laminaire, en particulier à des pressions supérieures à 0.1 MPa, où les écarts sont importants. Toutefois, les vitesses de combustion laminaire de l'éthanol sont plutôt bien représentées à 0.1 MPa, et surtout, l'effet global de l'ajout d'alcool est lui aussi parfaitement simulé, puisque le schéma d'oxydation tri-espèces reproduit l'effet linéaire pour le butanol et non-linéaire pour l'éthanol. Les erreurs sur les mélanges isooctane/alcools semblent dépendre de l'erreur associée aux carburants purs.

### 3.4 Étude de simulation avec le code PSR

Les écarts observés dans le paragraphe précédent entre les résultats expérimentaux et les simulations sur les vitesses de combustion laminaire nous poussent à nous poser des questions sur le schéma d'oxydation tri-espèces utilisé. Il s'agit à la base d'une combinaison de mécanismes d'oxydation de l'isooctane, de l'éthanol et du butanol. Ces mécanismes ont été validés sur une certaine plage de richesse et de pression de manière indépendante, mais jamais sous cette forme combinée. L'objectif est maintenant d'identifier des pistes cinétiques nous permettant de mieux comprendre les écarts observés entre les simulations et l'expérimental. Pour ce faire, de nouvelles simulations ont été réalisées avec le code PSR (Perfectly Stirred Reactor) de Chemkin (1989a), qui permet de simuler la configuration JSR (Jet Stirred Reactor). Le réacteur auto-agité comme le code PSR permet de voir l'évolution de la concentration des espèces à un temps de séjour donné et pour un ensemble de températures, de pressions et de richesses données. Cette étude a permis de comparer les concentrations de certaines espèces intermédiaires comme le  $C_2H_4$ ,  $C_4H_8$ ,... du schéma cinétique d'oxydation du mélange isooctane/éthanol/butanol et celles déterminées par des essais expérimentaux dans un JSR issus de la littérature pour les carburants purs. Ce sont les espèces en C0-C4 qui ont été privilégiées dans l'étude, car elles sont pression dépendantes et ont donc un rôle important sur les vitesses de combustion laminaire (Hoyermann *et al.* (2004c) et Ahmed *et al.* (2007a)).

Le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces est une compilation des mécanismes d'oxydation d'un mélange de butanol et d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) de Dagaut et Togbé (2008d), de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a). Dagaut et Togbé (2008d) ont validé le sous-mécanisme d'oxydation du butanol à l'aide d'essais expérimentaux dans un JSR pour une pression de 1.0 MPa, une plage de température allant de 770 à 1220 K, une concentration molaire de carburant de 0.1% et un temps de passage de 0.7s. Quatre différentes richesses ont été considérées : 0.3, 0.6, 1.0 et 2.0. Une bonne adéquation entre les simulations PSR et les essais en JSR a été trouvée. Leplat *et al.* (2010g) ont validé le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol à l'aide d'essais expérimentaux dans un JSR pour des pressions de 0.1 et 1.0 MPa, une plage de température allant de 890 à 1250 K et une concentration de carburant de 2000 ppm. Quatre différentes richesses ont été considérées : 0.25, 0.5, 1.0 et 2.0 avec un temps de passage de 0.07 s (0.1 MPa) et 0.3, 0.6, 1.0 et 2.0 avec un temps de passage de 0.7 s (1.0 MPa). Les simulations PSR et les essais en JSR ont montré une bonne concordance. Enfin, Curran *et al.* (2002a) ont validé le sous-mécanisme d'oxydation de l'isooctane à l'aide d'essais expérimentaux dans un JSR pour une pression de 1.0 MPa, une plage de température allant de 550 à 1150 K, une concentration molaire de carburant de 0.1% et un temps de passage de 1s. Quatre différentes richesses ont été considérées : 0.3, 0.5, 1.0 et 1.5. Au final, les simulations reproduisaient relativement bien les essais expérimentaux en JSR. Comme précédemment pour les vitesses de combustion laminaire, ces validations à l'aide d'essais expérimentaux dans un JSR permettent de justifier en partie l'utilisation de ces sous-mécanismes d'oxydation dans le schéma d'oxydation tri-espèces.

Dans le cadre de cette étude, étant donné que le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces a été conçu par P. Dagaut (ICARE), seules les études récentes concernant les essais expérimentaux en JSR pour caractériser l'oxydation de l'isooctane, de l'éthanol et du butanol et impliquant P. Dagaut ont été utilisées à savoir :

- Pour l'oxydation de l'isooctane, l'étude proposée par Moréac *et al.* (2006g).
- Pour l'oxydation de l'éthanol, les études proposées par Dagaut et Togbé (2008c) et Leplat *et al.* (2010g).

- Pour l'oxydation du butanol, les études proposées par Dagaut et Togbé (2008d) et Dagaut *et al.* (2009c).

### 3.4.1 Oxydation de l'isooctane

Dans le cas de l'oxydation de l'isooctane, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces que nous avons utilisé a été comparé aux résultats expérimentaux présentés par Moréac *et al.* (2006g). Ils ont réalisé des essais expérimentaux avec de l'isooctane dans un JSR avec les conditions initiales suivantes : mélange stœchiométrique fortement dilué (Fraction molaire de carburant  $X_{\text{carb}}=0.00125$ ), une pression de 1.0 MPa, une plage de température de 600 à 1000 K et un temps de passage ( $\tau$ ) de 1 s. Ce sont ces mêmes données qui ont été implémentées dans le code PSR. Ils ont mesuré les concentrations du  $\text{IC}_4\text{H}_8$ , du  $\text{C}_8\text{H}_{18}$  et du  $\text{CO}_2$ .

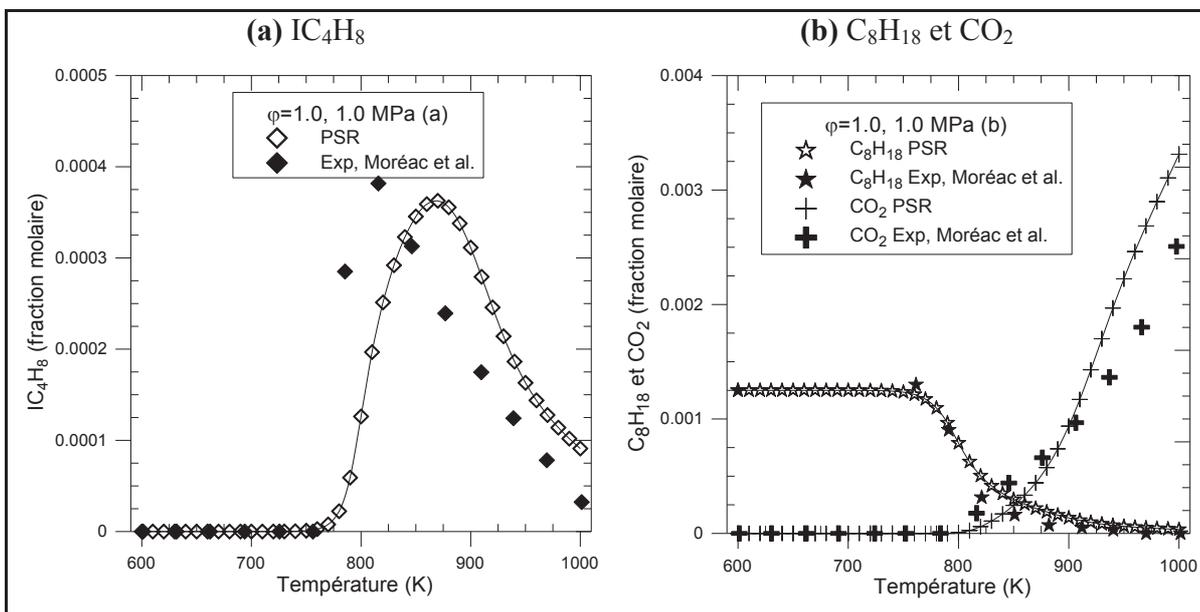


Figure 3-5: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Moréac *et al.* (2006g) sur la concentration de  $\text{IC}_4\text{H}_8$  (a) et  $\text{C}_8\text{H}_{18}$  et  $\text{CO}_2$  (b) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{\text{carb}}=0.00125$  et  $\tau=1\text{s}$

Sur la Figure 3-5 (a), l'évolution de la concentration de  $\text{IC}_4\text{H}_8$  (l'isobutène) issue des simulations PSR et des données expérimentales de Moréac *et al.* (2006g) en fonction de la température pour une pression de 1.0 MPa est présentée. Les maxima de concentrations

atteintes sont sensiblement identiques. Donc en termes de production de cette espèce, le schéma d'oxydation tri-espèces arrive à bien reproduire les données expérimentales. Cependant, le maximum de la concentration de  $\text{IC}_4\text{H}_8$  provenant des données expérimentales apparaît à plus basse température que celui provenant des simulations. Le  $\text{IC}_4\text{H}_8$  est donc activé à plus faible température et s'oxyde aussi à de plus faibles températures dans le cas des données expérimentales par rapport à nos simulations. Ceci signifie que le schéma d'oxydation tri-espèces reproduit avec un certain retard l'auto-inflammation du mélange air/isooctane, par rapport à l'expérimental, d'où le retard dans la production de l'espèce  $\text{IC}_4\text{H}_8$ . Ceci pourrait expliquer, en partie, pourquoi les vitesses de combustion laminaire de l'isooctane issues de nos simulations sont plus lentes que nos données expérimentales.

Sur la Figure 3-5 (b), l'évolution des concentrations de  $\text{C}_8\text{H}_{18}$  et de  $\text{CO}_2$  issues des simulations PSR et des données expérimentales de Moréac *et al.* (2006g) en fonction de la température et pour une pression de 1.0 MPa est présentée. La concentration de  $\text{C}_8\text{H}_{18}$  est parfaitement reproduite par les simulations vis-à-vis des essais expérimentaux. Il en est de même pour la concentration de  $\text{CO}_2$ , même si vers les hautes températures, la production de  $\text{CO}_2$  est plus forte avec les simulations. Ceci laisse penser que globalement le sous-mécanisme d'oxydation de l'isooctane qui a été utilisé fonctionne relativement bien, puisqu'il est capable de reproduire l'oxydation de l'isooctane et la production du  $\text{CO}_2$  avec précision. En effet, cette étude valide le fait qu'il ait été choisi pour être introduit dans le mécanisme d'oxydation tri-espèces que nous utilisons. Cependant, au vu des résultats des simulations numériques sur les vitesses de combustion laminaire ainsi que sur la concentration du  $\text{IC}_4\text{H}_8$ , il paraît évident que de nombreuses améliorations doivent être apportées sur les réactions impliquant les espèces intermédiaires, afin de mieux reproduire leurs évolutions lors des simulations PSR et de vitesse de combustion laminaire.

### 3.4.2 Oxydation de l'éthanol

Dans le cas de l'oxydation de l'éthanol, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces a été comparé aux résultats expérimentaux présentés par Dagaut et Togbé (2008c) pour une pression de 1.0 MPa et par Leplat *et al.* (2010g) pour des pressions de 0.1 et 1.0 MPa.

### 3.4.2.1 Données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c)

Dagaut et Togbé (2008c) ont réalisé des essais expérimentaux avec un mélange avec 85%<sub>vol</sub> d'éthanol et 15%<sub>vol</sub> d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) dans un JSR avec les conditions initiales suivantes : mélange stœchiométrique fortement dilué, une pression de 1.0 MPa, une plage de température de 770 à 1220 K et un temps de passage de 0.7 s. Ils ont mesuré les concentrations du CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>CHO, CH<sub>2</sub>O, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH et CO<sub>2</sub>. Cette étude a été choisie, car le schéma d'oxydation tri-espèces est basé sur le schéma d'oxydation du butanol de Dagaut et Togbé (2008d), qui a été validé pour un mélange avec 85%<sub>vol</sub> de butanol et 15%<sub>vol</sub> d'une essence modèle. Cette étude sur l'éthanol se rapprochant de celle sur le butanol, il était donc intéressant de la prendre en compte.

L'évolution des concentrations de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b), C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> et C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> (c) et C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> (d) issues des simulations PSR et des données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c) en fonction de la température pour une pression de 1.0 MPa est tracée sur la Figure 3-6. Sur la Figure 3-6 (a), les concentrations de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> issues des simulations sous-estiment celles obtenues des données expérimentales. Cependant, il n'y a pas de décalage sur le début et la fin de la production de ces espèces, elles apparaissent dans la même gamme de température. Sur la Figure 3-6 (b), les simulations donnent des concentrations de CH<sub>3</sub>CHO supérieure et de CH<sub>2</sub>O inférieure à celles issues des données expérimentales, en termes de maximum. Cependant, le début de la production (basse température) de ces deux espèces est bien représenté par le mécanisme d'oxydation tri-espèces, car les productions de ces deux espèces commencent de manière similaire entre les simulations et l'expérimental. Mais à hautes températures, ces deux espèces sont toujours produites avec les simulations alors qu'elles ne le sont plus d'après les données expérimentales. Sur la Figure 3-6 (c), les simulations donnent des concentrations de C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> supérieure et de C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> inférieure à celles obtenues des données expérimentales. Cependant, leurs productions apparaissent au même moment (pour les mêmes températures). Enfin, sur la Figure 3-6 (d), les simulations sous-

estiment fortement la concentration de  $C_2H_2$  par rapport aux données expérimentales. Mais, peu de données étaient disponibles pour cette espèce, donc cette observation doit être relativisée. De même, il est difficile de juger sur la zone de production pour savoir si elles sont cohérentes ou pas entre les simulations et l'expérimental.

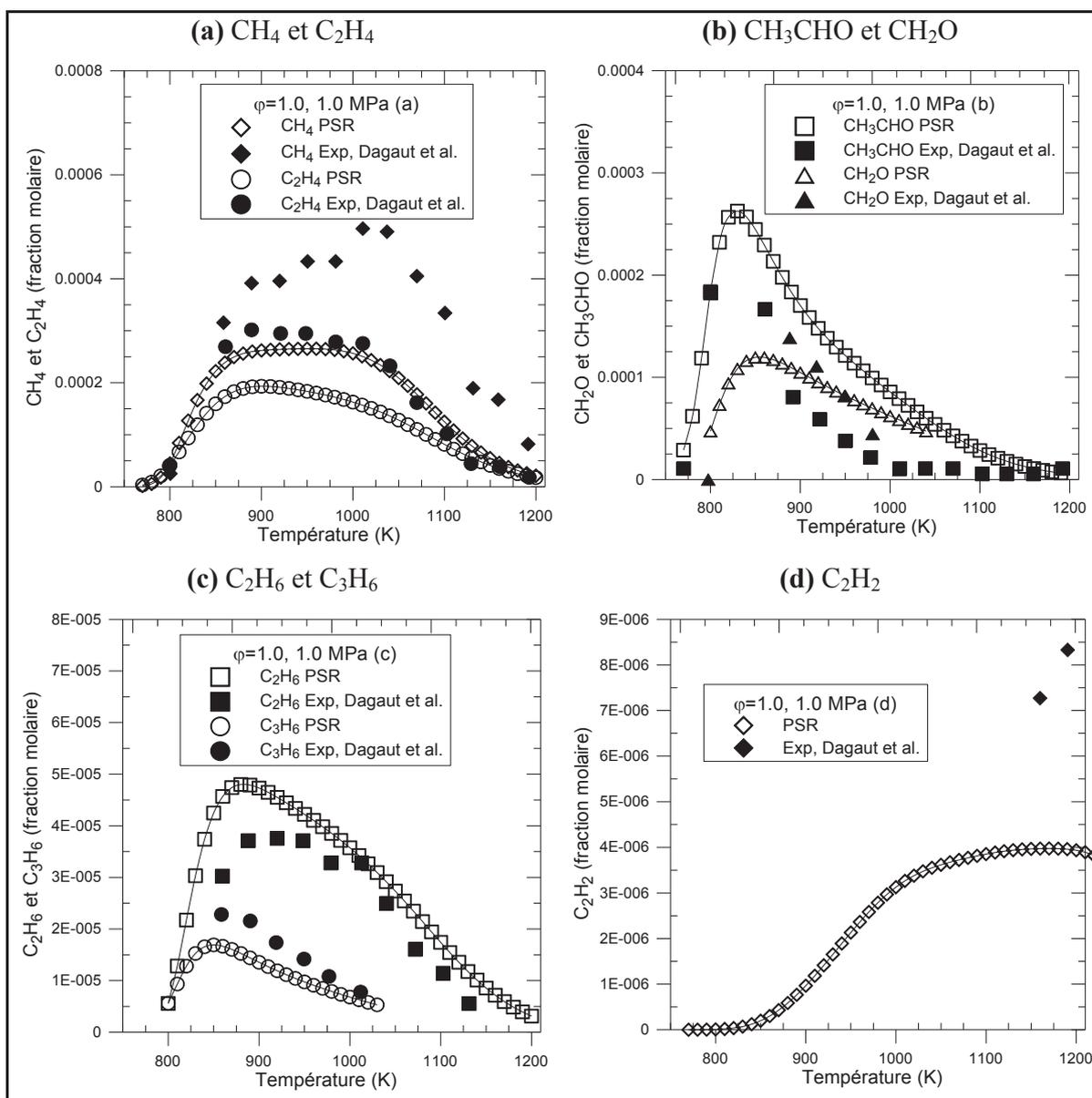


Figure 3-6: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c) sur la concentration de  $CH_4$  et  $C_2H_4$  (a),  $CH_3CHO$  et  $CH_2O$  (b),  $C_2H_6$  et  $C_3H_6$  (c) et  $C_2H_2$  (d) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{carb}=0.002$  et  $\tau=0.7s$

Au final, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces n'arrive pas à bien reproduire les concentrations des espèces intermédiaires dans le cas de l'oxydation de l'éthanol. Mais il arrive à reproduire l'auto-inflammation du mélange air/éthanol, puisque la production de chacune des espèces est activée de manière similaire en fonction de la température entre les simulations et l'expérimental. Tout ceci pourrait expliquer, en partie, pourquoi les vitesses de combustion laminaire de l'éthanol sont plus faibles lors de simulations que dans le cas des résultats expérimentaux à 1.0 MPa.

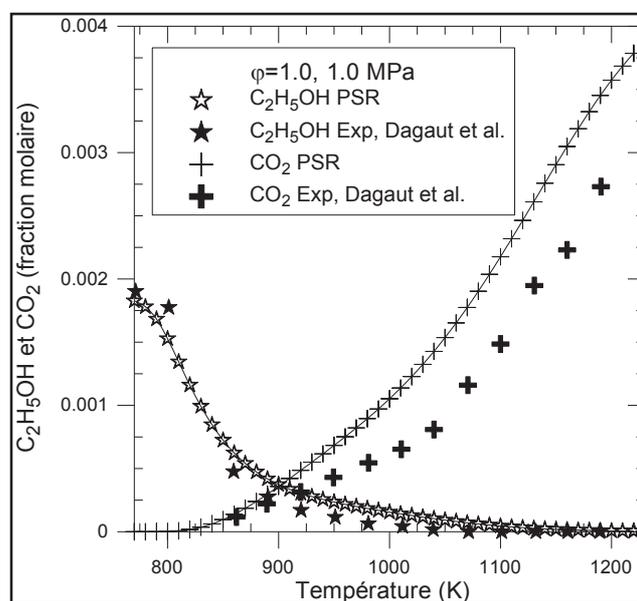


Figure 3-7: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales Dagaut et Togbé (2008c) sur la concentration de C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH et de CO<sub>2</sub> en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{\text{carb}}=0.002$  et  $\tau=0.7\text{s}$

Enfin, l'évolution des concentrations de C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH et de CO<sub>2</sub> issues des simulations PSR et des données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c) en fonction de la température et pour une pression de 1.0 MPa est présentée sur la Figure 3-7. La concentration d'éthanol est bien représentée par les simulations vis-à-vis de l'expérimental, tout comme celle de CO<sub>2</sub>, même si les simulations donnent à haute température une concentration plus forte que l'expérimental. De manière identique à ce qui avait été observée pour l'oxydation de l'isooctane, ces résultats indiquent que globalement le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol fonctionne assez bien, car il est capable de reproduire l'oxydation de l'éthanol et la

production du  $\text{CO}_2$  avec précision. Donc, cette première étude sur le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol valide le fait qu'il ait été choisi pour être introduit dans le mécanisme d'oxydation tri-espèces. Cependant, au vu des résultats des simulations numériques sur les vitesses de combustion laminaire ainsi que sur les concentrations des espèces intermédiaires étudiées ici, il paraît clair que de nombreuses améliorations doivent être apportées sur les réactions impliquant les espèces intermédiaires, afin de mieux prédire leurs évolutions lors des simulations PSR et de vitesse de combustion laminaire.

### 3.4.2.2 Données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g)

Leplat *et al.* (2010g) ont réalisé des essais expérimentaux avec de l'éthanol dans un JSR avec les conditions initiales suivantes : mélange stœchiométrique fortement dilué, des pressions de 0.1 et 1.0 MPa avec un temps de passage respectivement de 0.07 et de 0.7 s et une plage de température de 890 à 1250 K. Ils ont mesuré les concentrations du  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{CH}_3\text{CHO}$ ,  $\text{CH}_2\text{O}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$  et  $\text{CO}_2$ . Cette étude a été choisie en particulier, car elle utilise de l'éthanol seul contrairement à celle étudiée précédemment et elle fournit des données sur les concentrations d'espèces à 0.1 MPa, ce qui n'était pas le cas des autres.

Dans un premier temps, ce sont les données à 0.1 MPa qui vont nous intéresser. Les évolutions des concentrations de  $\text{CH}_4$  et  $\text{C}_2\text{H}_4$  (a),  $\text{CH}_3\text{CHO}$  et  $\text{CH}_2\text{O}$  (b),  $\text{C}_2\text{H}_2$  et  $\text{C}_2\text{H}_6$  (c) et  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$  et  $\text{CO}_2$  (d) issues des simulations PSR et des données de Leplat *et al.* (2010g) en fonction de la température sont tracées sur la Figure 3-8 pour une pression de 0.1 MPa. Sur la Figure 3-8 (a), les concentrations de  $\text{CH}_4$  et  $\text{C}_2\text{H}_4$  obtenues avec les simulations sont inférieures à celles des données expérimentales. Cependant, leurs productions apparaissent au même moment (pour les mêmes températures). Sur les Figure 3-8 (b) et (c), les concentrations de  $\text{CH}_3\text{CHO}$ ,  $\text{CH}_2\text{O}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$  et  $\text{C}_2\text{H}_6$  sont très similaires entre les simulations et l'expérimental que ce soit pour le maximum ou l'apparition de la production.

Au final, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces arrive à bien reproduire les concentrations des espèces intermédiaires que ce soit sur le maximum ou le moment de l'apparition de la production des espèces, excepté pour le  $\text{CH}_4$  et le  $\text{C}_2\text{H}_4$  où leurs maximums

sont inférieures aux données expérimentales. Ceci explique pourquoi à 0.1 MPa, il y a une si bonne concordance sur les vitesses de combustion laminaire entre les simulations et les données expérimentales.

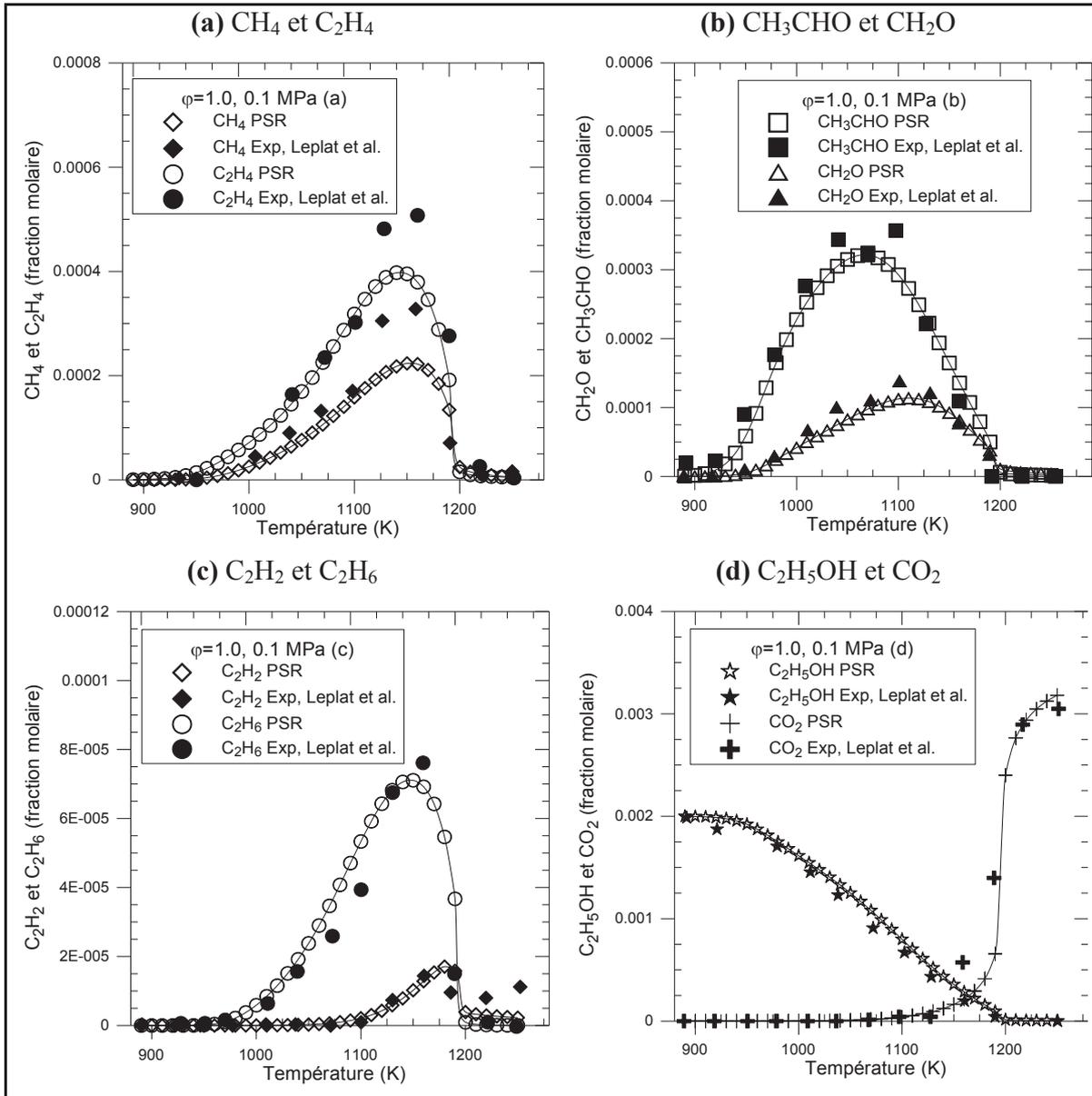


Figure 3-8: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g) sur la concentration de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b), C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> (c) et C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH et CO<sub>2</sub> (d) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 0.1 MPa avec  $X_{\text{carb}}=0.002$  et  $\tau=0.07\text{s}$

Enfin, l'évolution des concentrations de  $C_2H_5OH$  et de  $CO_2$  issues des simulations PSR et des données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g) en fonction de la température et pour une pression de 0.1 MPa est présentée sur la Figure 3-8 (d). Que ce soit sur la concentration de  $C_2H_5OH$  ou de  $CO_2$ , une bonne concordance est trouvée entre les simulations et les données expérimentales. Donc, comme il a été vu pour l'oxydation de l'éthanol précédemment avec les données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008c), le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol fonctionne très bien, car il est capable de reproduire d'une part, les concentrations de l'éthanol et du  $CO_2$ , et d'autre part les concentrations des espèces intermédiaires. Donc cette nouvelle étude, mais à 0.1 MPa cette fois-ci, permet de justifier de nouveau pleinement le choix qui a été fait d'utiliser ce sous-mécanisme d'oxydation dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. De plus, les bons résultats obtenus entre les simulations PSR et les données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g) expliquent pourquoi il y avait une si bonne corrélation entre les données expérimentales et les simulations sur les vitesses de combustion laminaire de l'éthanol à 0.1 MPa.

Maintenant, ce sont les données expérimentales sur l'éthanol à 1.0 MPa de Leplat *et al.* (2010g) auxquelles nous allons nous intéresser. Les évolutions des concentrations de  $CH_4$  et  $C_2H_4$  (a),  $CH_3CHO$  et  $CH_2O$  (b),  $C_2H_6$  (c) et  $C_2H_5OH$  et  $CO_2$  (d) issues des simulations PSR et des données de Leplat *et al.* (2010g) en fonction de la température sont tracées sur la Figure 3-9 pour une pression de 1.0 MPa. Contrairement à ce qui a pu être constaté à 0.1 MPa, les concentrations de certaines espèces diffèrent énormément entre les simulations et les données expérimentales. Sur la Figure 3-9 (a), un bon accord entre les données expérimentales et les simulations est observé pour le  $CH_4$  et le  $C_2H_4$ . Sur la Figure 3-9 (b), les simulations donnent des concentrations de  $CH_3CHO$  supérieure et de  $CH_2O$  inférieure à celles issues des données expérimentales en termes de maximum. Cependant, le début de la production (basse température) de ces deux espèces est bien représenté par le mécanisme d'oxydation tri-espèces, car les productions de ces deux espèces commencent de manière similaire entre les simulations et l'expérimental. Mais à haute température, le  $CH_3CHO$  est toujours produit avec les simulations, même si la concentration tend à décroître, alors qu'il ne l'est plus d'après les données expérimentales. Par contre, pour le  $CH_2O$ , à haute température,

la production est toujours active que ce soit pour les simulations ou l'expérimental, malgré une décroissance.

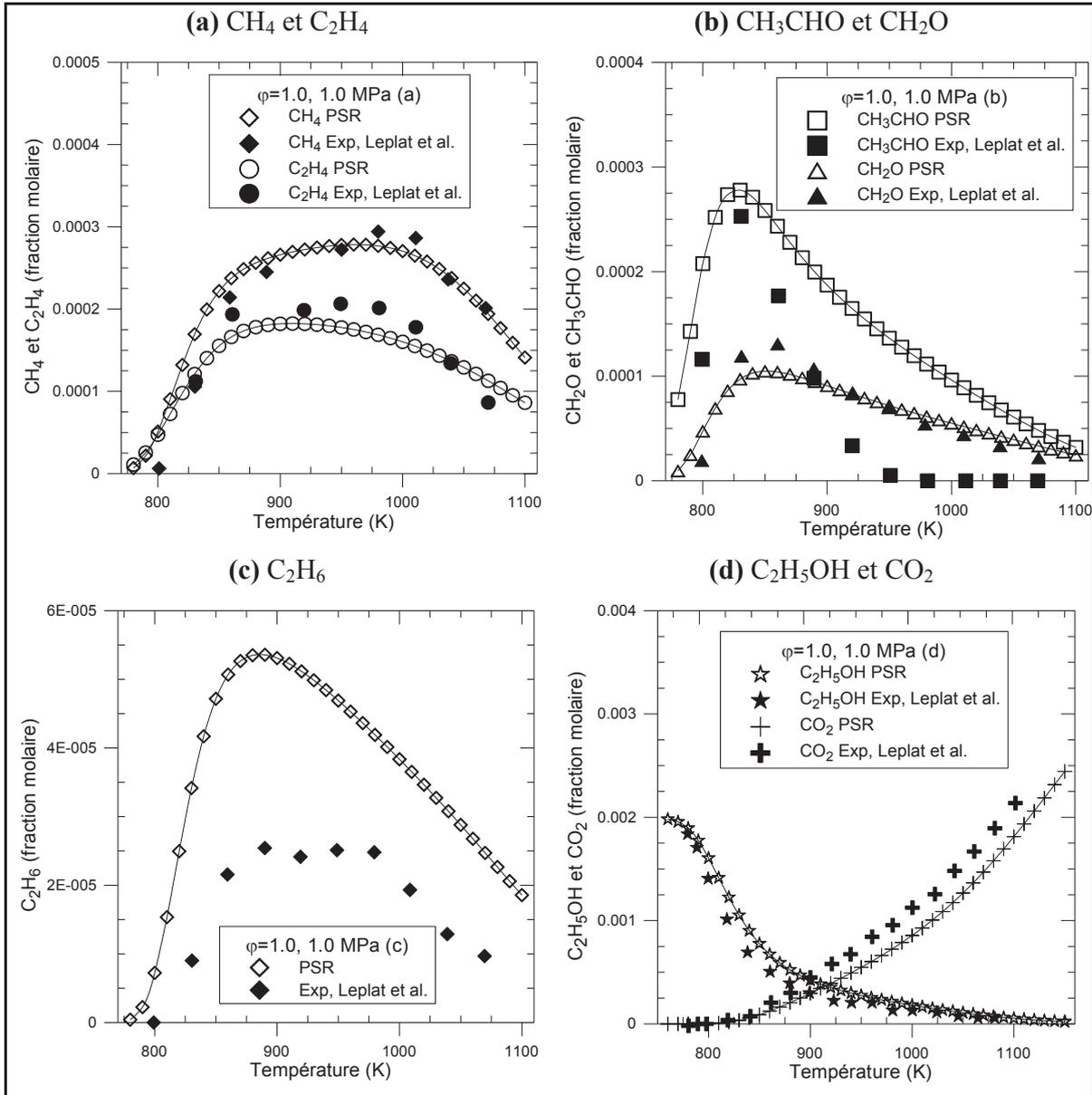


Figure 3-9: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g) sur la concentration de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b), C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> (c) et C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH et CO<sub>2</sub> (d) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{\text{carb}}=0.002$  et  $\tau=0.7\text{s}$

Enfin, sur la Figure 3-9 (c), la concentration de  $C_2H_6$  a une allure similaire entre les simulations et l'expérimental. Cependant, les simulations surestiment cette dernière par rapport à l'expérimental. Toutes ces différences sur les espèces intermédiaires entre les simulations PSR et les données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g) à 1.0 MPa mettent en évidence et expliquent les différences observées entre les vitesses de combustion laminaire issues des simulations et des données expérimentales.

Enfin, l'évolution des concentrations de  $C_2H_5OH$  et de  $CO_2$  issues des simulations PSR et des données expérimentales de Leplat *et al.* (2010g) en fonction de la température et pour une pression de 1.0 MPa est présentée sur la Figure 3-9 (d). On constate que pour le  $C_2H_5OH$ , comme pour le  $CO_2$ , les concentrations de ces espèces coïncident quasiment parfaitement entre l'expérimental et les simulations. Ceci confirme que le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol fonctionne bien globalement à 1.0 MPa. Cependant, contrairement à 0.1 MPa, le schéma d'oxydation tri-espèces n'arrive pas à reproduire correctement les concentrations de certaines espèces intermédiaires obtenues par Leplat *et al.* (2010g) à 1.0 MPa. Ceci explique pourquoi à cette pression il y avait tant d'écart entre les simulations et les résultats expérimentaux concernant les vitesses de combustion laminaire.

Pour conclure sur l'oxydation de l'éthanol, il a été montré qu'à 0.1 MPa, non seulement les espèces intermédiaires, mais aussi le  $CO_2$  et l'éthanol avaient leurs concentrations bien reproduites par le schéma d'oxydation tri-espèces comparativement aux données expérimentales. Ceci explique la bonne concordance entre les simulations et les données expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire. Cependant à 1.0 MPa, pour les deux études (Leplat *et al.* (2010g) et Dagaut et Togbé (2008c)), les concentrations de certaines espèces intermédiaires sont mal reproduites par le schéma d'oxydation tri-espèces, ce qui indique pourquoi à 1.0 MPa, les vitesses de combustion laminaire étaient mal prédites par les simulations. Enfin, en ce qui concerne le sous-mécanisme d'oxydation de l'éthanol utilisé dans le schéma d'oxydation tri-espèces, il a été validé globalement pour l'étude de Leplat *et al.* (2010g) à 0.1 MPa, comme à 1.0 MPa, ainsi que par Dagaut et Togbé (2008c) à 1.0 MPa. Tout ceci met en évidence qu'il y a de nombreux efforts à apporter pour corriger les réactions

impliquant les espèces intermédiaires, afin d'améliorer le schéma d'oxydation tri-espèces, dans le but de mieux prédire les vitesses de combustion laminaire à haute pression.

### 3.4.3 Oxydation du Butanol

Dans le cas de l'oxydation du butanol, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces a été comparé aux résultats expérimentaux présentés par Dagaut et Togbé (2008d) et par Dagaut *et al.* (2009c), les deux pour une pression de 1.0 MPa.

#### 3.4.3.1 Données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008d)

Dagaut et Togbé (2008d) ont réalisé des essais expérimentaux avec un mélange avec 85%<sub>vol</sub> de butanol et 15%<sub>vol</sub> d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) dans un JSR avec les conditions initiales suivantes : mélange stœchiométrique fortement dilué, à une pression de 1.0 MPa avec un temps de passage de 0.7 s et une plage de température de 770 à 1220 K. Ils ont mesuré les concentrations du CH<sub>4</sub>, C<sub>4</sub>H<sub>8</sub>, CH<sub>3</sub>CHO, CH<sub>2</sub>O, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO, C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>OH et CO<sub>2</sub>.

Cette étude a été choisie car le schéma d'oxydation tri-espèces est basé en grande partie sur le mécanisme d'oxydation du butanol proposé dans cet article.

L'évolution des concentrations de CH<sub>4</sub> et C<sub>4</sub>H<sub>8</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b), C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> et C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO (c) et C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>OH et CO<sub>2</sub> (d) issues des simulations PSR et des données de Dagaut et Togbé (2008d) en fonction de la température pour une pression de 1.0 MPa est tracée sur la Figure 3-10. Sur la Figure 3-10 (a), la concentration de CH<sub>4</sub> obtenue avec les simulations est inférieure à celle des données expérimentales. Cependant, sa production apparaît au même moment (pour les mêmes températures). Dans le même temps, la concentration de C<sub>4</sub>H<sub>8</sub> est bien reproduite par les simulations comparativement aux données expérimentales. Sur la Figure 3-10 (b), les concentrations de CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O, sont très similaires entre les simulations et l'expérimental que ce soit pour le maximum ou l'apparition de la production. Cependant, à haute température, on remarque qu'avec les simulations, il y a toujours

production de ces deux espèces, alors qu'elles sont terminées dès 1000 K, dans le cas expérimental.

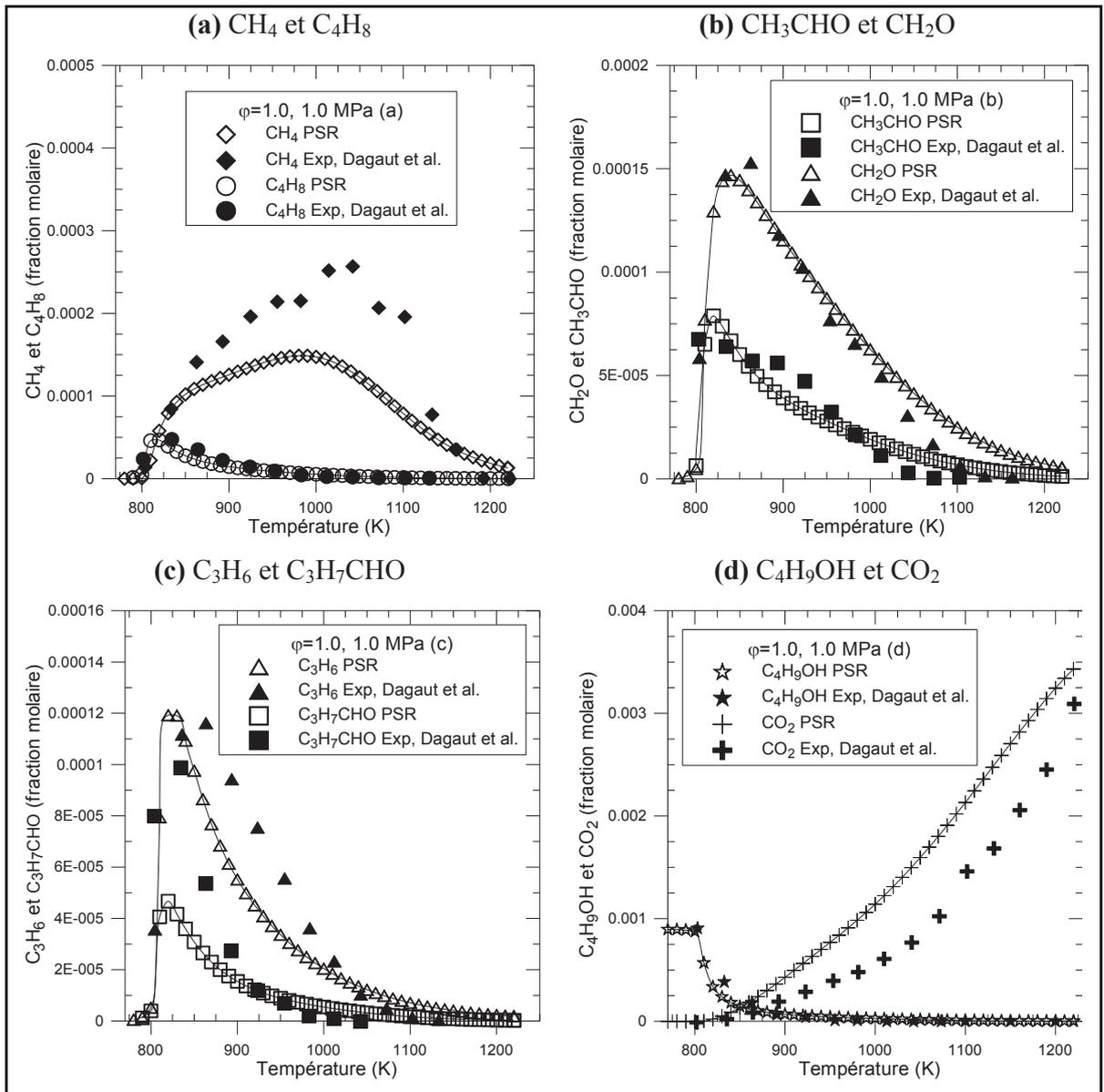


Figure 3-10: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008d) sur la concentration de CH<sub>4</sub> et C<sub>4</sub>H<sub>8</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b), C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> et C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO (c) et C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>OH et CO<sub>2</sub> (d) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{\text{carb}}=0.001$  et  $\tau=0.7\text{s}$

Enfin, sur la Figure 3-10 (c), le maximum de la concentration de  $C_3H_6$  est similaire pour les simulations et l'expérimental. Cependant, il arrive légèrement plus tôt dans le cas des simulations. Par contre, la concentration de  $C_3H_7CHO$  est fortement sous-estimée par les simulations par rapport aux données expérimentales. De plus, même si à basse température, le début de la production de cette espèce est bien corrélé entre les simulations et l'expérimental, ce n'est pas le cas à haute température pour la fin de la production. Les simulations donnent une légère production de  $C_3H_7CHO$ , alors qu'il n'y en plus dans le cas expérimental.

Au final, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces ne fonctionne pas bien pour les espèces intermédiaires, car il y a des décalages et des sous-estimations avec les simulations. Ceci explique donc les écarts que l'on a pu observer sur les vitesses de combustion laminaire entre les simulations et l'expérimental.

Enfin, l'évolution des concentrations de  $C_4H_9OH$  et de  $CO_2$  issues des simulations PSR et des données expérimentales de Dagaut et Togbé (2008d) en fonction de la température et pour une pression de 1.0 MPa est présentée sur la Figure 3-10 (d). On constate une bonne corrélation entre les simulations et les données expérimentales sur la concentration de butanol. Il en est aussi de même pour la concentration de  $CO_2$ , même si les simulations surestiment un peu celle-ci par rapport à l'expérimental. Ceci montre que le sous-mécanisme d'oxydation du butanol fonctionne plutôt bien, car il est capable de reproduire les concentrations du butanol et du  $CO_2$ . Donc cette étude permet de justifier le choix qui a été fait d'utiliser ce sous-mécanisme d'oxydation dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. Mais, avec les résultats des simulations numériques obtenues sur les vitesses de combustion laminaire ainsi que sur les concentrations des espèces intermédiaires étudiées ici, il est évident que de nombreuses améliorations doivent être apportées sur les réactions impliquant les espèces intermédiaires dans le cas du butanol, afin de mieux reproduire leurs évolutions lors des simulations PSR et de vitesse de combustion laminaire.

### 3.4.3.2 Données expérimentales de Dagaut *et al.* (2009c)

Dagaut *et al.* (2009c) ont réalisé des essais expérimentaux avec du butanol dans un JSR avec les conditions initiales suivantes : mélange stœchiométrique fortement dilué, à une pression de 1.0 MPa avec un temps de passage de 0.7 s et une plage de température de 800 à 1150 K. Ils ont mesuré les concentrations du CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>CHO, CH<sub>2</sub>O, C<sub>4</sub>H<sub>8</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO, C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>OH et CO<sub>2</sub>.

Cette étude a été choisie car elle utilise du butanol seul contrairement à celle étudiée précédemment.

Les évolutions des concentrations de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b), C<sub>4</sub>H<sub>8</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> (c) et C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> et C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO (d) issues des simulations PSR et des données de Dagaut *et al.* (2009c) en fonction de la température pour une pression de 1.0 MPa sont tracées sur la Figure 3-11 et celles de C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> (a) et C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>OH et CO<sub>2</sub> (b) sur la Figure 3-12. Sur la Figure 3-11 (a), les concentrations de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> sont plus élevées à faible température dans le cas des simulations par rapport aux données expérimentales. Par contre, les simulations diminuent plus rapidement avec l'augmentation de la température et sous-estiment alors les données expérimentales. De plus, on ne retrouve pas avec les simulations la forme en cloche obtenue expérimentalement sur la concentration de C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>. Sur la Figure 3-11 (b), les concentrations de CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O obtenues par simulation sont plus faibles, mais ont des tendances similaires aux données expérimentales. On remarque qu'à haute température, les concentrations de ces deux espèces tendent vers 0 avec les simulations, ce qui n'est pas le cas avec les données expérimentales. Sur la Figure 3-11 (c), les concentrations de C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> provenant des simulations PSR sont plus élevées à des températures inférieures à 1000 K et similaires par la suite aux données expérimentales. En ce qui concerne le C<sub>4</sub>H<sub>8</sub>, sa concentration est très supérieure avec les données expérimentales par rapport aux simulations, en particulier à basse température. De plus, à haute température, la concentration de C<sub>4</sub>H<sub>8</sub> tend vers 0 avec les simulations, alors qu'elle reste assez élevée dans le cas des données expérimentales.

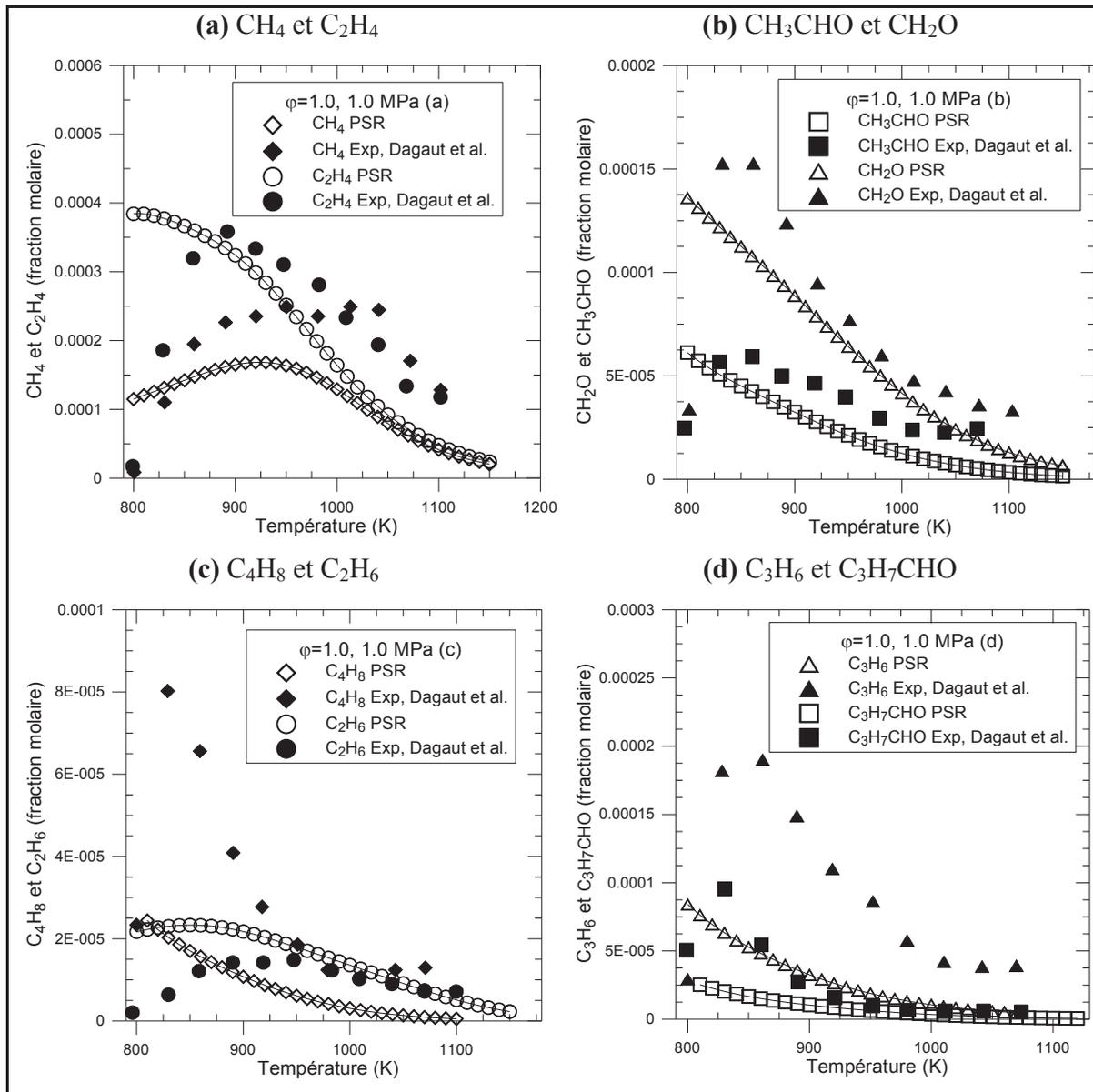


Figure 3-11: Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut *et al.* (2009c) sur la concentration de CH<sub>4</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (a), CH<sub>3</sub>CHO et CH<sub>2</sub>O (b) et C<sub>4</sub>H<sub>8</sub> et C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> (c) et C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> et C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO (d) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{\text{carb}}=0.001$  et  $\tau=0.7\text{s}$

Sur la Figure 3-11 (d), les concentrations de C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO et C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> obtenus via les simulations sous-estiment fortement celles obtenues expérimentalement, en particulier à basse température. Cependant, les concentrations de C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO tendent vers 0 en augmentant la température, que ce soit dans le cas expérimental ou numérique. Par contre, la concentration

de  $C_3H_6$  tend elle aussi vers 0 avec les simulations, alors qu'elle reste très élevée dans le cas expérimental. De plus, les données expérimentales donnent des formes en cloche sur les concentrations de deux espèces qui ne se retrouvent pas avec les simulations.

Enfin, sur la Figure 3-12 (a), la concentration de  $C_2H_2$  issue des simulations surestime celle obtenue expérimentalement. De plus, la concentration de  $C_2H_2$  augmente continuellement avec la température dans le cas des simulations, alors qu'expérimentalement, une forme de cloche est obtenue sur la concentration.

Toutes ces différences sur les espèces intermédiaires entre les simulations PSR et les données expérimentales de Dagaut *et al.* (2009c) à 1.0 MPa mettent en évidence et expliquent les différences observées entre les vitesses de combustion laminaire issues des simulations et des données expérimentales.

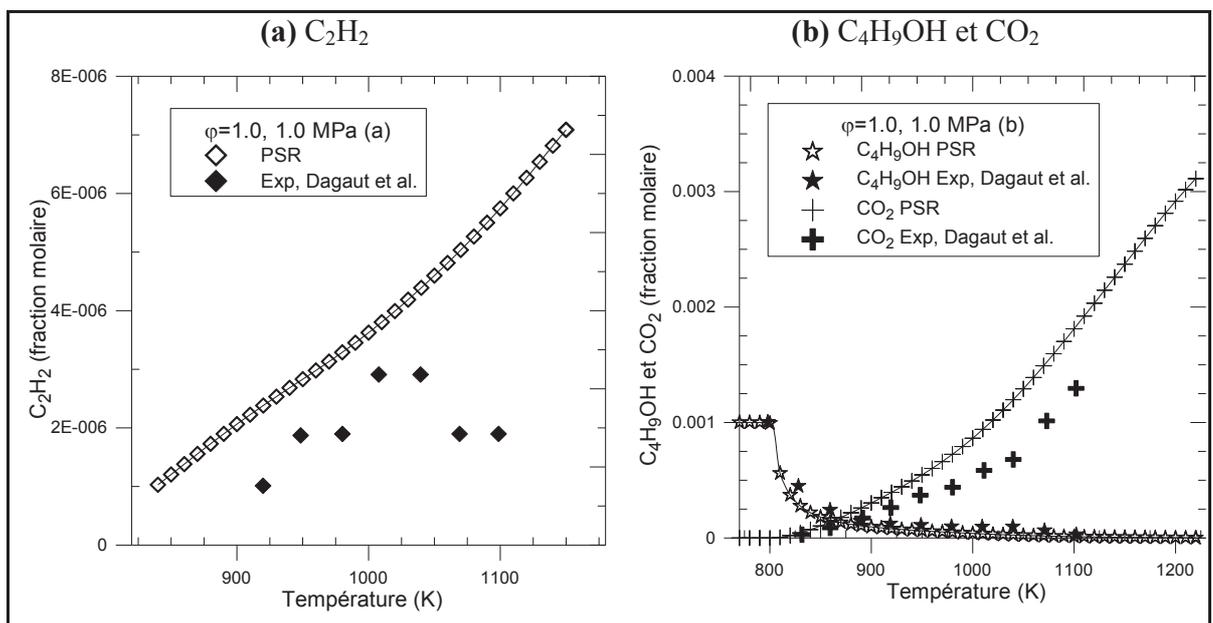


Figure 3-12 : Comparaison entre simulations PSR et données expérimentales de Dagaut *et al.* (2009c) sur la concentration de  $C_2H_2$  (a) et  $C_4H_9OH$  et  $CO_2$  (b) en fonction de la température pour  $\phi=1.0$ , une pression de 1.0 MPa avec  $X_{carb}=0.001$  et  $\tau=0.7s$

Enfin, l'évolution des concentrations de  $C_2H_5OH$  et de  $CO_2$  issues des simulations PSR et des données expérimentales de Dagaut *et al.* (2009c) en fonction de la température et pour une pression de 1.0 MPa est présentée sur la Figure 3-12 (d). On constate une bonne

concordance sur la concentration de butanol entre les simulations et les données expérimentales. Il en est de même pour la concentration de  $\text{CO}_2$ , même si les simulations surestiment un peu celle-ci par rapport à l'expérimental. Ceci montre que le sous-mécanisme d'oxydation du butanol fonctionne plutôt bien, car il est capable de reproduire les concentrations du butanol et du  $\text{CO}_2$ . Donc cette dernière étude permet de justifier, de nouveau, le choix qui a été fait d'utiliser ce sous-mécanisme d'oxydation dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. Mais, avec les résultats des simulations numériques obtenues sur les vitesses de combustion laminaire ainsi que sur les concentrations des espèces intermédiaires étudiées ici, il est évident que de nombreuses améliorations doivent être apportées sur les réactions impliquant les espèces intermédiaires, afin de mieux reproduire leurs évolutions lors des simulations PSR et de vitesse de combustion laminaire.

Après avoir analysé chaque espèce indépendamment les unes des autres, on remarque globalement une incohérence entre la consommation du  $\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$  et la production des espèces intermédiaires comme le  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,... En effet, à basse température, alors que la consommation de  $\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$  n'a pas commencé, la production de la majorité des espèces intermédiaires, étudiées ici, a elle déjà commencé, ce qui est impossible. Sans destruction de  $\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$ , il ne peut y avoir déjà des autres espèces. Cette incohérence vient s'ajouter aux erreurs de prédictions des simulations par rapport aux données expérimentales sur les concentrations des espèces intermédiaires.

Pour conclure sur l'oxydation du butanol, il a été montré que le  $\text{CO}_2$  et le butanol avaient leurs concentrations bien prédites par le schéma d'oxydation tri-espèces comparativement aux données expérimentales, ce qui justifie donc l'utilisation du sous-mécanisme d'oxydation du butanol. Cependant, pour les deux études, les concentrations des espèces intermédiaires sont mal reproduites par le schéma d'oxydation tri-espèces, ce qui indique pourquoi les vitesses de combustion laminaire étaient mal prédites par les simulations.

Cela met donc en évidence que des études expérimentales supplémentaires et de validation de mécanisme sont nécessaires pour mieux prendre en considération les réactions impliquant

les espèces intermédiaires dans le cas du butanol, afin d'améliorer le schéma d'oxydation tri-espèces, dans le but de mieux prédire les vitesses de combustion laminaire à haute pression.

#### 3.4.4 Conclusion

L'objectif de cette étude de simulation avec le code PSR était d'identifier des pistes cinétiques permettant de mieux comprendre les écarts observés entre les simulations et l'expérimental sur les vitesses de combustion laminaire. Pour ce faire, des simulations ont été réalisées avec le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces en se comparant aux données expérimentales proposées pour l'oxydation de l'isooctane, par l'étude proposée par Moréac *et al.* (2006g), pour l'oxydation de l'éthanol, par les études proposées par Dagaut et Togbé (2008c) et Leplat *et al.* (2010g) et pour l'oxydation du butanol, par les études proposées par Dagaut et Togbé (2008d) et Dagaut *et al.* (2009c). Dans chaque cas, un mélange stœchiométrique fortement dilué a été utilisé. La plage de température utilisée variait entre 600 et 1300 K. Et toutes les études ont été effectuées pour une pression de 1.0 MPa avec un temps de passage situé entre 0.7 et 1 s et une seule (Leplat *et al.* (2010g)) pour une pression de 0.1 MPa avec un temps de passage de 0.07 s.

Pour l'ensemble des cas étudiés, les concentrations de CO<sub>2</sub> et de carburant sont correctement simulées comparativement aux données expérimentales. Ceci laisse penser que globalement les sous-mécanismes d'oxydation des trois carburants fonctionnent correctement, ce qui justifie leurs utilisations dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. Pour le cas à 0.1 MPa avec de l'éthanol, il a été montré que les concentrations des espèces intermédiaires étaient très similaires entre les simulations et les données expérimentales, ce qui explique pourquoi une bonne concordance avait été trouvée entre les simulations et les résultats expérimentaux sur les vitesses de combustion laminaire. Cependant à 1.0 MPa et pour tous les carburants, les concentrations des espèces intermédiaires sont moins bien représentées. Ce qui explique pourquoi à haute pression, de grands écarts ont été obtenus sur les vitesses de combustion laminaire des trois carburants et de leurs mélanges.

Au final, vu les écarts importants observés sur les vitesses de combustion laminaire et sur les concentrations des espèces intermédiaires entre les simulations et les données expérimentales, il est nécessaire de mieux étudier les réactions, impliquant ces espèces, afin d'apporter des améliorations, dans le but d'avoir des résultats prédictifs en meilleure adéquation avec l'expérimental lors des études avec le code PSR et sur les vitesses de combustion laminaire

### 3.5 Analyse de sensibilité

Pour cela, afin de mettre en évidence les voies d'amélioration du schéma cinétique d'oxydation proposé, nous avons procédé à différentes analyses de réactivité à partir de plusieurs mécanismes d'oxydation issus de la littérature. Ces mécanismes sont pour l'oxydation de l'isooctane, celui de Jerzembeck *et al.* (2009e), pour l'oxydation de l'éthanol, celui de Marinov (1999b) et pour l'oxydation du butanol, celui de Sarathy *et al.* (2009j).

Le mécanisme d'oxydation de l'isooctane de Jerzembeck *et al.* (2009e) est un mécanisme réduit, construit à partir de celui de Curran *et al.* (2002a). Il a été validé expérimentalement pour les vitesses de combustion laminaire dans une enceinte à volume constant à 0.1 MPa et 298 K de pression et température initiales et sur une plage de richesse de 0.7 à 1.4. Il a été de plus validé jusqu'à 373 K et 2.5 MPa sur une plage de richesse de 0.7 à 1.2. Des essais de vitesse de combustion laminaire dans une enceinte ont été réalisés sur une plage de richesse allant de 0.7 à 1.4 par Sarathy *et al.* (2009j), pour une pression de 0.089 MPa et une température initiale de 350 K. Une bonne concordance entre les simulations et les données expérimentales a été trouvée. La vitesse de combustion laminaire maximale a été trouvée expérimentalement et numérique pour une richesse de 1.1. Enfin, afin de valider le mécanisme d'oxydation de l'éthanol de Marinov (1999b), des données expérimentales issues de la littérature ont été utilisées, en particulier celles d'Egolfopoulos *et al.* (1992b), à 453 K et 0.1 MPa pour une plage de richesse allant de 0.6 à 1.5. Une bonne concordance a été trouvée pour les mélanges pauvres. Pour les mélanges riches, le mécanisme d'oxydation de l'éthanol sous-estime les données expérimentales.

Les analyses de sensibilité, effectuées à l'aide du code Premix du package Chemkin (1989a), consistent en l'étude de la réponse de la vitesse de flamme laminaire à la variation des vitesses des réactions présentes dans le mécanisme d'oxydation du carburant. Il faut savoir qu'il existe trois paramètres permettant de caractériser la vitesse d'une réaction :

- Le facteur pré-exponentiel  $A_p$  ( $s^{-1}$ ).
- La puissance  $n$  sur la température.
- L'énergie d'activation  $E_a$  (J/mol).

La vitesse  $k$  d'une réaction s'écrit alors comme suit :

$$k = A_p \cdot T^n \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{R \cdot T}\right) \quad (3.1)$$

En particulier, l'influence du facteur pré-exponentiel  $A_p$  sur la vitesse de combustion laminaire va être étudiée. Le fonctionnement de l'analyse de ces résultats se fait comme suit :

- Lorsque la sensibilité est positive, ceci veut dire qu'en augmentant le facteur pré-exponentielle  $A_p$ , cela augmente la vitesse de combustion laminaire.
- A l'opposé, lorsque la sensibilité est négative, ceci veut dire qu'une augmentation du facteur pré-exponentiel  $A_p$ , induit une diminution de la vitesse de combustion laminaire.

L'exploitation des résultats issus de l'analyse des réactivités à partir des schémas cinétiques d'oxydation des carburants purs issus de la littérature va permettre, par comparaison avec la réactivité de notre mécanisme d'oxydation tri-espèces, de mettre en évidence les réactions ayant un fort impact sur la vitesse de combustion laminaire. Le but est de mieux comprendre les phénomènes chimiques et d'obtenir des tendances en fonction du carburant utilisé. Cette analyse de sensibilité sur les réactions doit permettre d'expliquer les écarts observés sur les vitesses de combustion laminaire et donc de détecter des voies d'amélioration de notre schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. Cette seule analyse ne suffit pas, mais aide à avoir une première idée des écarts de prédiction avec tous les schémas cinétiques d'oxydation et surtout par rapport aux données expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire.

### 3.5.1 Étude de sensibilité sur le débit

L'analyse de sensibilité sur la vitesse de combustion laminaire n'est pas directement réalisable avec le programme Premix de Chemkin (1989a). Il a donc été nécessaire de réaliser une analyse intermédiaire sur le débit, qui est fortement lié à la vitesse de combustion laminaire. Donc une analyse de sensibilité des réactions sur le débit a été réalisée en utilisant les schémas cinétiques d'oxydation des carburants purs seuls, que sont l'isooctane, l'éthanol et le butanol. L'ensemble des simulations ont été réalisées avec des paramètres de calcul identiques à savoir :

- Pour un mélange stœchiométrique.
- Pour une pression initiale de 0.1 MPa et une température initiale de 423 K.
- Avec un nombre de points alloués ne dépassant pas les 1500 points.
- Avec un degré de raffinement de maille important avec un GRAD (équivalent à SLOPE sous Cantera) et CURV de 0.01.
- Et avec une distance de calcul de 5 cm.

Tableau 3-2: Valeurs de vitesses de combustion laminaire à 423 K, 0.1 MPa et  $\phi=1.0$  pour les trois carburants purs obtenues expérimentalement et numériquement à l'aide du schéma cinétique tri-espèces et des schémas des carburants purs seuls

|                  | <b>Expérimental</b> | <b>Schéma d'oxydation<br/>carburant pur</b> | <b>Schéma d'oxydation<br/>tri-espèces</b> |
|------------------|---------------------|---|---|
| <b>Isooctane</b> | 55.2 cm/s           | 51.3 cm/s                                   | 50.9 cm/s                                 |
| <b>Butanol</b>   | 61.7 cm/s           | 62.6 cm/s                                   | 57.9 cm/s                                 |
| <b>Éthanol</b>   | 65.9 cm/s           | 69.6 cm/s                                   | 64.9 cm/s                                 |

Dans le Tableau 3-2, les résultats expérimentaux et numériques obtenus avec le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces et ceux des carburants purs seuls sur les vitesses de combustion à  $\phi=1.0$ , 0.1 MPa et 423 K pour l'oxydation de l'isooctane, l'éthanol et le butanol sont présentés. Les données des simulations avec les schémas cinétiques d'oxydation de la littérature sont très proches des résultats expérimentaux. Cependant pour les deux alcools, on constate une légère surestimation des schémas réactionnels par rapport aux

données expérimentales (écarts relatifs de 6% pour l'éthanol et de 1% pour le butanol). En ce qui concerne l'isooctane, le schéma réactionnel quant à lui sous-estime la donnée expérimentale (écart relatif de 7%). De plus, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces a tendance à sous-estimer les vitesses de combustion laminaire obtenues expérimentalement (écarts relatifs de 2% pour l'éthanol et 8% pour le butanol et l'isooctane) et numériquement avec les trois schémas cinétiques d'oxydation des carburants purs.

Au final, pour l'isooctane, on remarque que quelque soit le schéma cinétique d'oxydation utilisé, les simulations sous-estiment toujours les données expérimentales. Donc la réactivité du mécanisme d'oxydation de l'isooctane doit être améliorée, afin de mieux prédire les phénomènes chimiques de hautes températures et basses pressions, dans le but d'avoir une valeur de vitesse de combustion laminaire plus proche de l'expérimental. Pour l'éthanol, la vitesse de combustion laminaire est bien reproduite avec le schéma d'oxydation tri-espèces. Cependant, pour le butanol, la valeur expérimentale est nettement sous-estimée, alors que le schéma cinétique d'oxydation du butanol seul la reproduisait bien. Donc l'amélioration apportée au mécanisme d'oxydation du butanol semble plus simple à réaliser que dans le cas de l'isooctane par exemple.

Les sensibilités des réactions sur le débit pour l'isooctane, l'éthanol et le butanol sont tracées respectivement sur les Figure 3-13, Figure 3-14 et Figure 3-15. Il y a un ensemble de réactions, qui présentent une sensibilité importante sur le débit, qui est lié à la vitesse de combustion laminaire, et qui sont similaires aux deux alcools, voire aux trois carburants. On peut citer en autre :

- $\text{OH} + \text{H}_2 = \text{H} + \text{H}_2$  (Michael et Sutherland (1988b)).
- $\text{O} + \text{OH} = \text{O}_2 + \text{H}$  (réaction inversée entre le schéma de l'isooctane et ceux des alcools) (Baulch *et al.* (1992a)).
- $\text{H} + \text{HO}_2 = \text{OH} + \text{OH}$  (Baulch *et al.* (1994a)).
- $\text{H} + \text{HO}_2 = \text{H}_2 + \text{O}_2$  (Baulch *et al.* (1994a)).
- $\text{H} + \text{OH} + \text{M} = \text{H}_2\text{O} + \text{M}$  (Baulch *et al.* (1976)).
- $\text{CH}_2(\text{s}) + \text{O}_2 = \text{CO} + \text{OH} + \text{H}$  (Miller et Bowman (1989b)).

- $\text{HCO} + \text{O}_2 = \text{CO} + \text{HO}_2$  (Timonen *et al.* (1988c)).
- $\text{HCO} + \text{M} = \text{H} + \text{CO} + \text{M}$  (Timonen *et al.* (1987b)).
- $\text{HCO} + \text{OH} = \text{H}_2\text{O} + \text{CO}$  (Seery et Bowman (1970)).
- $\text{HCO} + \text{H} = \text{CO} + \text{H}_2$  (Timonen *et al.* (1987a)).
- $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$  (Warnatz (1984d)).

Ceci était attendu, car cet ensemble de réactions fait partie du sous-mécanisme d'oxydation des hydrocarbures C0-C4. Ce sous-mécanisme d'oxydation est connu justement pour avoir un fort impact sur la vitesse de combustion laminaire (Ahmed *et al.* (2007a) et Hoyermann *et al.* (2004c)). Ces réactions, qui pour leur grande majorité ont la même sensibilité pour les trois carburants, pourraient être modifiées, mais cela pourrait avoir un impact dramatique sur la réactivité d'oxydation du mécanisme intégral.

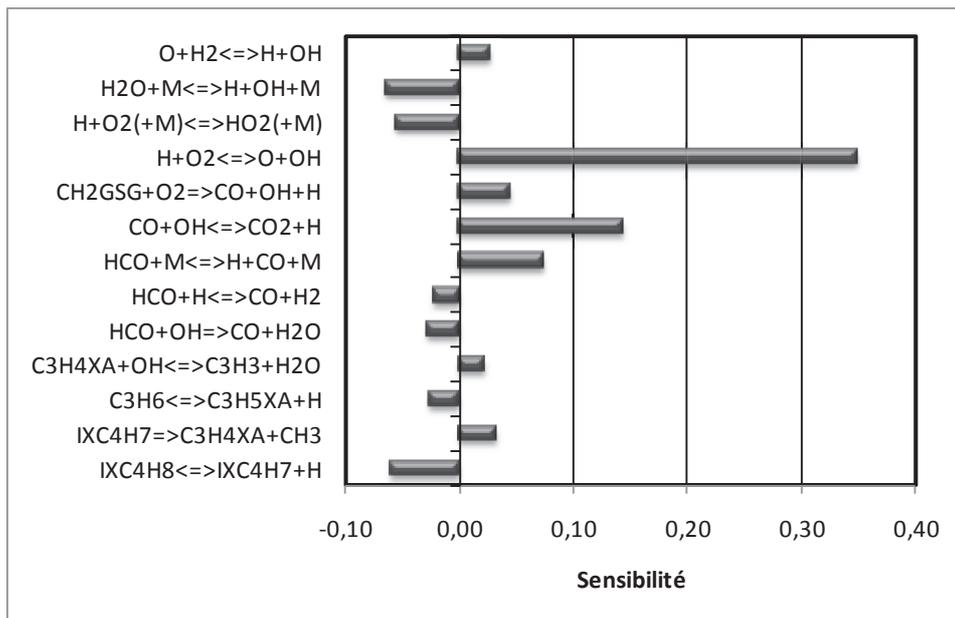


Figure 3-13: Étude de sensibilité des principales réactions sur le débit pour l'isooctane

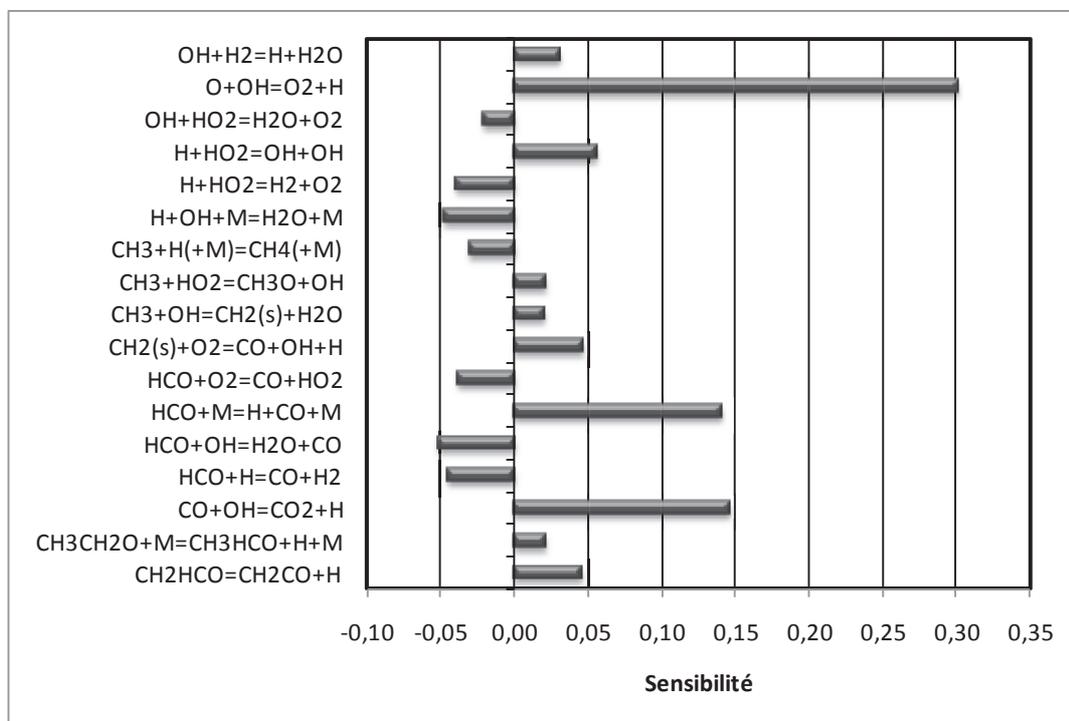


Figure 3-14: Étude de sensibilité des principales réactions sur le débit pour l'éthanol

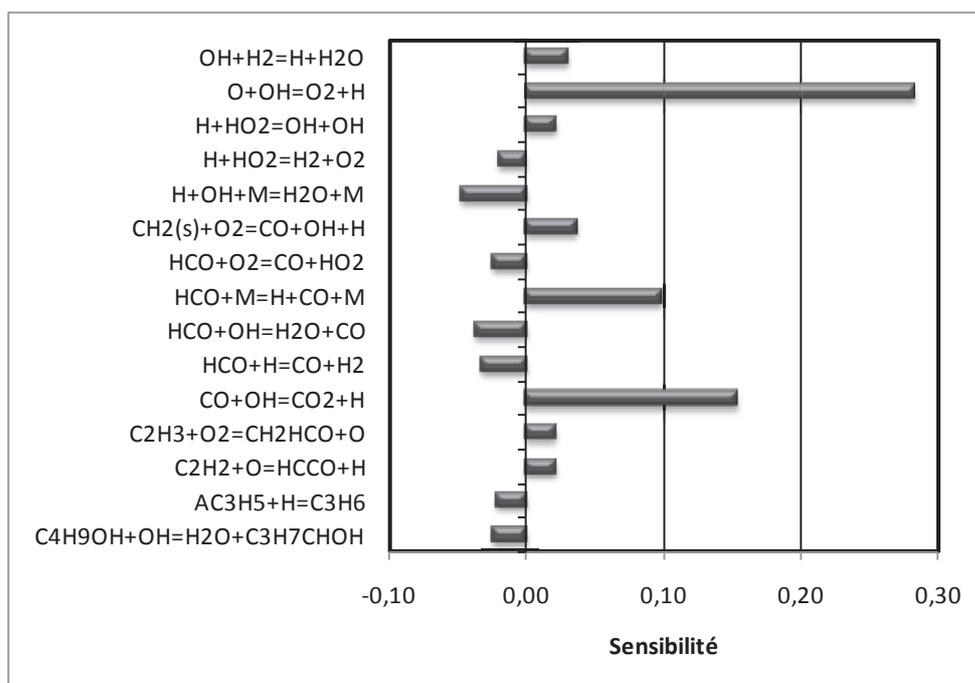


Figure 3-15: Étude de sensibilité des principales réactions sur le débit pour le butanol

Donc, comme la modification du sous-mécanisme d'oxydation de base C0-C4 entrainerait une modification importante de la réactivité du mécanisme, nous avons cherché à étudier la sensibilité des sous-mécanismes propres à chaque carburant. Donc dans la suite, la sensibilité sur le débit des réactions de décomposition des carburants a été étudiée.

### 3.5.2 Étude de sensibilité des réactions de décomposition du carburant sur le débit

Sur les Figure 3-16, Figure 3-17 et Figure 3-18, les sensibilités des réactions de décomposition du carburant sur le débit sont tracées respectivement pour l'isooctane, l'éthanol et le butanol. Les plus forts coefficients de sensibilités obtenus avec ces réactions de décomposition du carburant sont de l'ordre 0.02, comparativement au 0.30 des réactions primaires. Ceci met en évidence que les réactions les plus sensibles sont bien celles du sous-mécanisme d'oxydation C0-C4 et que les réactions de décomposition des carburants semblent n'avoir que peu d'influence sur la vitesse de combustion laminaire.

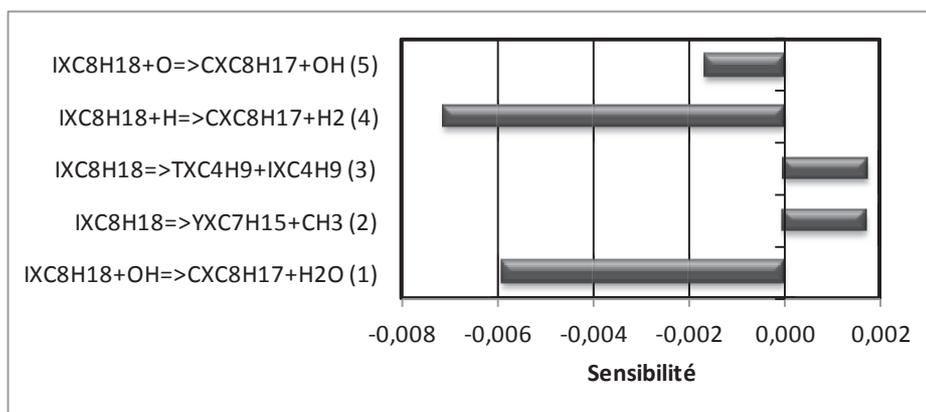


Figure 3-16: Étude de sensibilité des réactions impliquant l'isooctane sur le débit

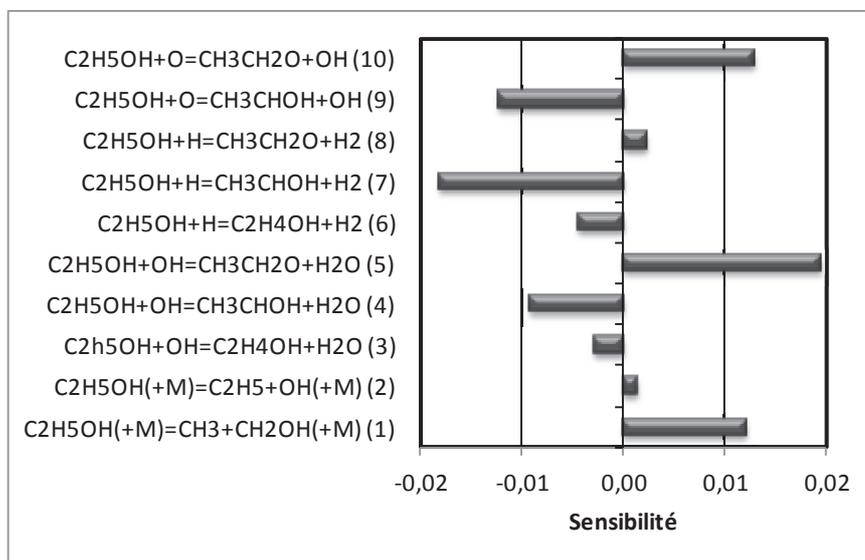


Figure 3-17: Étude de sensibilité des réactions impliquant l'éthanol sur le débit

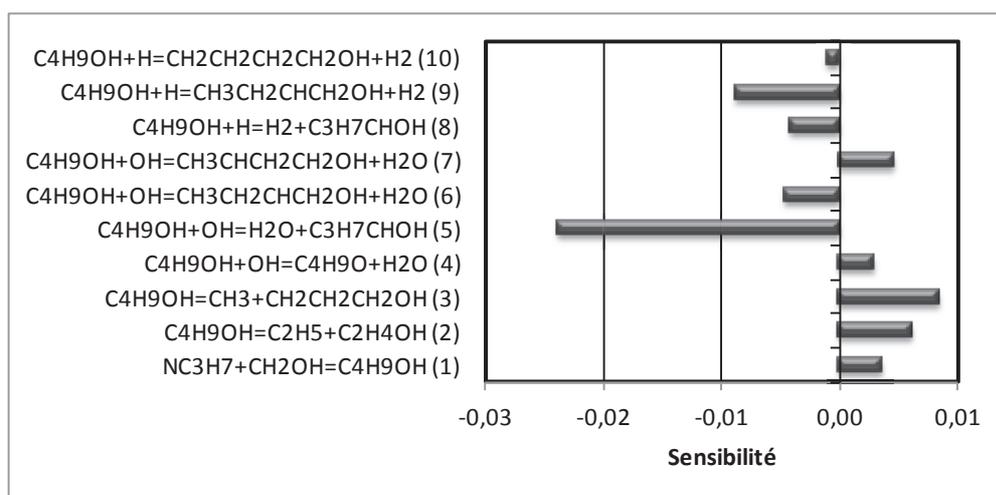


Figure 3-18: Étude de sensibilité des réactions impliquant le butanol sur le débit

Tout porte à croire que ce sont les réactions du sous-mécanisme d'oxydation C0-C4, qui doivent être modifiées, afin d'améliorer la prédiction de la vitesse de combustion laminaire. Ces améliorations de mécanisme sont importantes et nécessitent d'être réalisées lors d'une étude de cinétique plus approfondie. La modification du mécanisme tri-espèces ne sera pas effectuée lors de ce travail de thèse.

L'intérêt de cette première étude a été de mettre en évidence les écarts entre les données de simulation et les données expérimentales, puis de mettre en évidence les voies réactionnelles à améliorer dans le sous-mécanisme d'oxydation C0-C4 du mécanisme d'oxydation tri-espèces, afin de mieux prédire les vitesses de combustion laminaire des mélanges isooctane/alcools.

### 3.6 Conclusion

Une étude numérique sur la vitesse de combustion laminaire a été réalisée à l'aide du logiciel Cantera (2003a), en utilisant un schéma cinétique, incluant l'isooctane, l'éthanol et le butanol, possédant 228 espèces et 1737 réactions. Ce schéma cinétique est basé sur ceux d'un mélange de butanol et d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) de Dagaut et Togbé (2008d), de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a). La température initiale a été fixée à 423 K et différentes pressions initiales ont été testées : 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa. Les mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol (0, 25, 50, 75 et 100%vol d'alcool) ont été testés. Et pour chaque mélange et pression initiale, un balayage en richesse de 0.6 à 1.4 a été réalisé.

Tout d'abord, il a été noté que les vitesses de combustion laminaire de l'éthanol à 0.1 MPa étaient quasiment superposées aux données expérimentales, contrairement aux cas de l'isooctane et du butanol. Globalement, les vitesses de combustion laminaire issues des simulations numériques sous-estiment celles provenant des données expérimentales et l'écart augmente avec l'augmentation de la pression. Comme pour les carburants purs, il est cohérent de trouver ces mêmes écarts sur les mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol. Cependant, les tendances sur l'évolution de la vitesse de combustion laminaire avec l'ajout d'alcool ont été retrouvées, à savoir une augmentation linéaire avec l'ajout de butanol et une augmentation non-linéaire avec l'ajout d'éthanol.

Par la suite, dans le but d'identifier les pistes cinétiques qui permettent de mieux expliquer ces écarts observés, une étude de simulations avec le code PSR de Chemkin (1989a) sur les

profils de concentration d'espèces en fonction de la température a été effectuée avec le schéma d'oxydation tri-espèces. Les résultats obtenus ont été comparés aux données expérimentales réalisées en JSR disponibles dans la littérature sur les carburants purs. Des espèces intermédiaires du mécanisme d'oxydation C0-C4, ainsi que le CO<sub>2</sub> et le carburant, ont été analysées, car les espèces de ce mécanisme C0-C4 sont connues pour avoir un impact important sur la vitesse de combustion laminaire. Il a été mis en évidence que de nombreuses différences sur les concentrations d'espèces existaient entre les simulations PSR et les données expérimentales, ce qui explique les différences obtenues sur la vitesse de combustion laminaire entre l'expérimental et les simulations. Cependant, il a été montré que pour l'éthanol à 0.1 MPa, les profils de concentrations d'espèces étaient similaires entre ceux venant de nos simulations et ceux venant des données expérimentales. Par contre, comme pour les vitesses de combustion laminaire, les différences s'accroissaient avec l'augmentation de la pression. Enfin, sur les profils de concentration du CO<sub>2</sub> et des carburants purs, de bonnes concordances ont été trouvées entre les simulations et les données expérimentales, ce qui a permis de justifier le bon fonctionnement global des sous-mécanismes d'oxydation de l'isooctane, de l'éthanol et du butanol, utilisés dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces.

Enfin, une étude de sensibilité sur le débit a été réalisée avec les schémas cinétiques d'oxydation des espèces purs (isooctane, éthanol et butanol). Le but était de mettre en évidence les réactions ayant un fort impact sur la vitesse de combustion laminaire, ce qui permettrait de détecter les voies d'amélioration du schéma d'oxydation tri-espèces. Dans un premier temps, les principales réactions influençant le débit sont les réactions appartenant au sous-mécanisme d'oxydation C0-C4. Ce sous-mécanisme est bien connu pour avoir un impact sur la vitesse de combustion laminaire. Cependant, modifier ces réactions pourrait engendrer un changement important dans la réactivité du mécanisme intégral. De plus, cette étude a montré que les réactions de décomposition du carburant avaient un impact négligeable sur la vitesse de combustion laminaire.

Cette étude a donc permis de mettre en évidence la sous-prédiction des valeurs des vitesses de combustion laminaire à partir du mécanisme cinétique regroupant l'isooctane, l'éthanol et le butanol. Elle a de plus, servi d'études préliminaires afin de montrer qu'il est nécessaire de reconsidérer ce mécanisme d'oxydation. En particulier, elle a permis de mettre en évidence la nécessité de travailler la description cinétique du sous-mécanisme d'oxydation C0-C4 dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. Ce sous-mécanisme est connu pour avoir un fort impact sur la vitesse de combustion laminaire, et il se pourrait donc qu'il soit le responsable des écarts importants sur la vitesse de combustion laminaire entre les simulations et l'expérimental.

## **PARTIE II**

### **APPLICATION DANS LES MOTEURS À ALLUMAGE COMMANDÉ**

**CHAPITRE 4 : INFLUENCE DE L'AJOUT D'ALCOOLS SUR LA PROPAGATION DE LA COMBUSTION DANS UN MOTEUR TRANSPARENT À ALLUMAGE COMMANDÉ**

**CHAPITRE 5 : INFLUENCE DE L'ADDITION D'ALCOOLS DANS LE CARBURANT SUR LES ÉMISSIONS POLLUANTS D'UN MOTEUR À ALLUMAGE COMMANDÉ À ISO-PERFORMANCE**



L'étude sur les vitesses de combustion laminaire avait, entre autre, pour objectif de caractériser le comportement des mélanges iso-octane/alcools à haute pression, dans le but de se rapprocher au plus près des conditions thermodynamiques d'un moteur à allumage commandé. En effet, au moment de l'allumage, les conditions de pression et de température sont entre 0.5 et 1.0 MPa et entre 500 et 1000 K. Certes, l'utilisation d'une température initiale de 423 K est relativement éloignée des conditions de température régnant dans un moteur au moment de l'allumage. Cependant, dans la littérature (Gülder (1984b)), il a été noté que les coefficients de puissance sur la température variaient légèrement entre l'iso-octane et l'éthanol. Ceci laisse à penser que les écarts observés pour les mélanges iso-octane/alcools s'accroissent légèrement entre 423 et 1000 K de température initiale. En plus des conditions thermodynamiques qui influencent la vitesse de combustion dans un moteur, les conditions aérodynamiques ont un impact prépondérant. C'est pourquoi il est pertinent d'étudier, dans un moteur à allumage commandé à accès optiques, la propagation de la combustion, afin de voir si les comportements des flammes laminaires et des flammes turbulentes sont corrélés.

Enfin, maintenant que l'impact de l'ajout d'alcool dans l'iso-octane sur les vitesses de combustion laminaire, qui est un des facteurs clés du dégagement de chaleur dans un moteur à allumage commandé, est connu. Il est légitime de se demander ce que l'ajout d'alcool va engendrer dans un moteur à allumage commandé en terme de performances et d'émissions polluantes. C'est pourquoi, une étude a été menée sur un moteur monocylindre à allumage commandé avec les mélanges iso-octane/alcools, afin de quantifier leur impact sur les émissions de polluants réglementés et non-réglementés, ainsi que sur les performances.



## **CHAPITRE 4**

### **INFLUENCE DE L'AJOUT D'ALCOOLS SUR LA PROPAGATION DE LA COMBUSTION DANS UN MOTEUR TRANSPARENT À ALLUMAGE COMMANDÉ**

#### **4.1 Introduction**

Dans ce chapitre, les résultats issus des expériences réalisées sur un moteur monocylindre à allumage commandé à accès optiques et injection indirecte sont présentés, afin d'évaluer l'impact des mélanges isooctane/alcools sur les premières étapes de la propagation de la combustion et de voir leurs influences sur le développement de la combustion. Ils sont comparés aux résultats obtenus avec les mélanges isooctane/éthanol. Afin d'apporter des éléments de compréhension nouveaux, l'analyse s'appuie fortement des résultats obtenus sur les vitesses de combustion laminaire et les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés, lors de l'étude dans l'enceinte à volume constant.

#### **4.2 État de l'art**

Une première partie de cette revue est plutôt consacrée aux résultats disponibles dans la bibliographie, sur l'analyse classique de la combustion, réalisée à partir du taux de dégagement de chaleur, puis ceux basés sur l'analyse de la combustion à partir de la visualisation. L'analyse n'est pas toujours si simple puisque dans le cas de l'injection directe essence, les propriétés physiques telles que la vaporisation ont un impact plus conséquent qu'en injection indirecte. Nous allons donc nous attacher à différencier les résultats selon ces deux configurations.

#### 4.2.1 Caractéristiques de la combustion des alcools dans les moteurs à allumage commandé

Taylor *et al.* (1996b) sont parmi les premiers à s'être intéressés à la caractérisation de la combustion pour des mélanges essence/éthanol (3.4, 6.9, 10.3 et 13.7%<sub>vol</sub>) sur un moteur 4 cylindres à allumage commandé et injection indirecte. En optimisant l'avance à l'allumage pour chaque mélange, une augmentation de la phase initiale de la combustion, caractérisée par CA10-CA0 ainsi que de la durée totale, caractérisée par CA90-CA10 a été observée en fonction de l'ajout d'alcool, mais la richesse variait selon l'ajout d'alcool. Varde *et al.* (2007i) ont de même comparé la combustion de différents mélanges essence/éthanol (10, 22 et 85%<sub>vol</sub>) mais à iso-PME (Pression moyenne effective) (entre 1 et 4 bars) dans un moteur 4 cylindres à injection indirecte et à allumage commandé. La même augmentation du CA5-CA0 et du CA95-CA5 avec l'ajout d'alcool a été observé mais qui s'atténue fortement (voire disparaît) avec l'augmentation de la PME. Plus récemment, Schifter *et al.* (2011m) ont observé des tendances inverses en étudiant des mélanges jusqu'à 20%<sub>vol</sub> d'éthanol dans l'essence dans un moteur monocylindre à allumage commandé et à injection indirecte, avec une avance d'allumage constante optimisée pour l'essence. Ils ont noté qu'à la stœchiométrie et en mélange pauvre ( $\phi=0.9$ ), le CA50, le CA90, ainsi que le CA90-CA0 diminuaient avec l'ajout d'éthanol, tandis que le CA10 n'évoluait pratiquement pas. La même conclusion a été faite par Szwaja et Naber (2010h) dans le cas de mélange avec le butanol (0, 20, 60 et 100%<sub>vol</sub>), pour une iso-avance à l'allumage. Quant à Dernote *et al.* (2010c), une même diminution pour la durée de la première phase de la combustion et de la durée totale a été observée mais en optimisant l'avance à l'allumage pour chaque mélange. L'effet de la richesse ayant de plus été étudié par ces derniers, montrant ainsi que les écarts restent assez constants pour le CA90-CA10 en fonction de la richesse mais les écarts augmentent en mélange pauvre pour le CA10-CA0.

Dans le cas des moteurs à injection directe essence, Turner *et al.* (2011n) ont observé une diminution du CA5-CA0 et du CA50-CA0 avec l'ajout d'éthanol (0, 10, 20, 30, 50, 85 et 100%<sub>vol</sub> dans l'essence) à iso-avance à l'allumage, lors d'un fonctionnement en mode

homogène; alors que Brewster (2007c) n'avait observé, avec un moteur identique, aucun écart entre de l'éthanol pur et de l'essence.

Quelques auteurs ont caractérisé la combustion pour les deux alcools, comme Yacoub *et al.* (1998f) sur un moteur monocylindre à allumage commandé et à injection indirecte avec des mélanges essence/éthanol et essence/butanol (2.5 et 5%<sub>vol</sub> d'alcool). Le taux de compression et l'avance à l'allumage ont été optimisés pour chaque mélange. Globalement, une augmentation du CA<sub>10</sub>-CA<sub>0</sub> avec l'ajout de butanol a été observée contre une baisse avec l'éthanol, alors qu'une augmentation de la durée de combustion a été observée pour les deux alcools. Smith et Sick (2007h) ont trouvé des tendances similaires sur un moteur à injection directe.

On peut donc ainsi retenir que la durée de combustion diminue avec l'ajout d'alcool comme le début de la combustion et tout particulièrement en mélange pauvre.

#### **4.2.2 Analyse d'images**

Malcolm *et al.* (2008e) et Aleiferis *et al.* (2008a) ont caractérisé la combustion dans un moteur monocylindre transparent à allumage commandé et injection indirecte pour différents mélanges isooctane/éthanol (0, 25 et 85%<sub>vol</sub>) et isooctane/butanol (0 et 25%<sub>vol</sub>). Deux richesses ont été considérées (1 et 0.8) avec une avance d'allumage constante, optimisée. A la stœchiométrie, l'ajout d'éthanol dans l'isooctane augmente la vitesse de combustion dans le cas de E85, alors qu'en mélange pauvre, l'ajout d'éthanol semble ralentir la combustion. Les tendances sont récapitulées dans le Tableau 4-1. De plus, ils ont mis en évidence un lien fort entre la phase initiale de la propagation de la combustion (résultats issus de la visualisation de la combustion) et le déroulement général de la combustion (résultats issus du calcul de la fraction massique brûlée à partir des données du capteur de pression cylindre).

Tableau 4-1: Tendances observées sur la phase initiale de la propagation de la combustion pour les mélanges avec éthanol et butanol comparés à Malcolm *et al.* (2008e)

| <b>Référence</b>             | <b>Isooctane</b> |                |            |
|------------------------------|------------------|----------------|------------|
| <b>Carburant</b>             | <b>B25</b>       | <b>E25</b>     | <b>E85</b> |
| <b><math>\phi=1.0</math></b> | / <sup>a</sup>   | -              | +          |
| <b><math>\phi=0.8</math></b> | / <sup>a</sup>   | / <sup>a</sup> | -          |

a: pas d'écart significatif, + : plus rapide, - : moins rapide

Serras-Pereira *et al.* (2008f) ont fait le même type d'études mais en comparant le butanol, l'éthanol, l'isooctane et l'essence dans un moteur monocylindre à allumage commandé à accès optiques mais injection directe avec une stratégie homogène. L'évolution du rayon de la flamme est très similaire pour les deux alcools et l'essence, par rapport à l'isooctane qui est plus lent. Par contre, sur les premières étapes de la combustion, le butanol semble avoir un développement plus rapide que les trois autres carburants.

On peut noter le manque certain de données expérimentales sur les effets des mélanges isooctane/butanol et isooctane/éthanol à la stœchiométrie et en mélange pauvre dans un moteur à allumage commandé, données qui permettraient d'apporter des conclusions plus affirmatives. C'est donc l'objectif de cette partie de ce travail de thèse : apporter de nouvelles données expérimentales sur les effets des mélanges isooctane/butanol sur les premières étapes de la propagation de la flamme, en comparaison aux mélanges isooctane/éthanol, en mélanges stœchiométrique et pauvre dans un moteur à allumage commandé et injection indirecte. Les résultats seront comparés avec ceux issus de l'analyse de la pression cylindre, ainsi qu'avec les données obtenues sur les vitesses de combustion laminaire et les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés.

### 4.3 Montage expérimental

#### 4.3.1 Le moteur monocylindre à accès optiques

Le moteur monocylindre 4 soupapes à allumage commandé (J4S Renault) à accès optiques et à injection dans le conduit d'admission, utilisé pour réaliser les essais, possède les caractéristiques suivantes : une cylindrée de  $499 \text{ cm}^3$ , un taux de compression de 9.5 avec un alésage, une course et une longueur de bielle respectivement de 88 mm, 82 mm et 137 mm. La chambre de combustion est de type en toit, générant ainsi un léger mouvement de Tumble. Afin d'avoir un accès optique dans la chambre de combustion, le piston est allongé et équipé d'un hublot en quartz de 66 mm de diamètre. La chemise est percée pour avoir deux accès optiques latéraux au niveau de la chambre de combustion; dans notre cas, cela nous a permis d'avoir accès au hublot et de le nettoyer en positionnant le piston au point mort haut. Le moteur est entraîné par une machine électrique permettant de garder le régime constant. Une photo du moteur à accès optiques en combustion (a), ainsi qu'un schéma du montage expérimental (b) sont présentés sur la Figure 4-1.

Le moteur est alimenté par de l'air pressurisé à travers un débitmètre volumique Brooks ayant une précision de  $\pm 0.7 \%$  sur le débit instantané. Avant d'arriver dans le port d'admission, l'air passe dans un plenum pour éviter les oscillations de pressions à l'admission. Le carburant liquide est pressurisé avec une différence de pression de 0.3 MPa par rapport à la pression d'admission. La quantité injectée est mesurée via un débitmètre massique Bronkhorst Cori-flow dans une gamme de 0 à 5 kg/h, avec une incertitude de  $\pm 0.1 \%$  de la pleine échelle et de  $\pm 0.2 \%$  du débit instantané. Pour assurer un bon mélange du carburant et de l'air, il faut parfaitement évaporer le carburant liquide dans le conduit d'admission.

Pour ce faire, trois différentes techniques ont été utilisées et couplées :

- 4 injections par cycle sont faites.
- Un injecteur à air a été utilisé. Une pompe à air prélevait une faible quantité de l'air après le débitmètre volumique et le propulsait juste au niveau du nez de l'injecteur pour aider à la vaporisation du spray de carburant liquide.
- Un chauffage local du port d'admission, se trouvant après l'injecteur, autour de 100 °C a été effectué pour assurer l'évaporation de toutes les gouttelettes de carburant liquide.

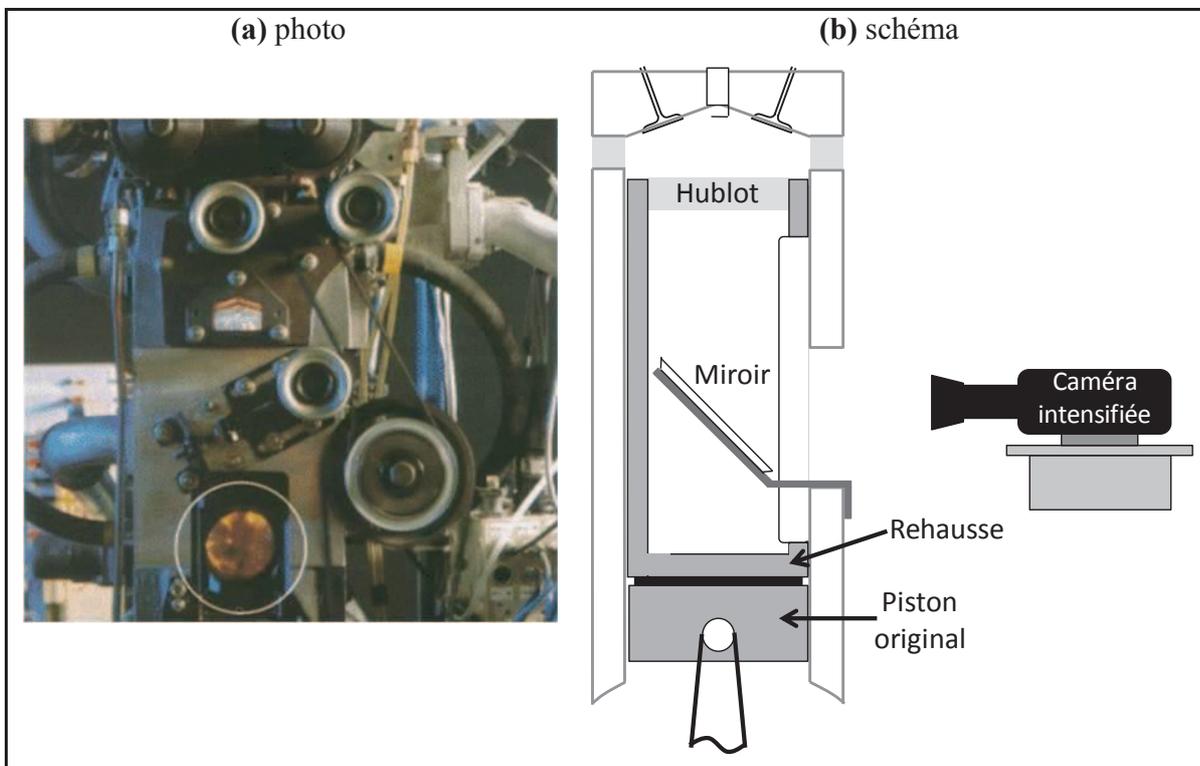


Figure 4-1: Photo du moteur monocylindre à accès optiques en combustion et schéma du montage expérimental

Un encodeur optique monté sur le vilebrequin, d'une résolution de 0.1 degré d'angle de vilebrequin, a été utilisé avec un capteur de pression AVL en quartz refroidi à l'eau et connecté à un amplificateur de charge pour enregistrer la pression dans le cylindre. La synchronisation des différents signaux de déclenchements et des systèmes d'acquisition de données est assurée par une carte compteur. L'allumage de la bougie est déclenché qu'une fois tous les 6 cycles afin éviter les gaz résiduels et garder constant la richesse dans la

chambre de combustion. Un ordinateur équipée d'une carte d'acquisition National Instruments permettait l'acquisition des données de pression dans le cylindre. 120 cycles en combustion ont été enregistrés pour chaque test effectué.

#### **4.3.2 Les conditions de fonctionnement**

Le régime du moteur était de 2000 tr/min. Les températures d'huile et de liquide de refroidissement ont été fixées à 80°C. L'air était préchauffé à 60°C, à l'aide d'une canne chauffante entre le débitmètre volumique et le plenum, et pressurisé à 0.6 bar. Deux points de fonctionnement, moyennement chargés, ont été choisis :

- Le point 1 avec une richesse de 1.
- Le point 2 avec une richesse de 0.8, afin de connaître l'influence d'un mélange pauvre sur la propagation de la combustion.

La même avance à l'allumage a été choisie pour comparer les premières étapes de la combustion pour l'ensemble des carburants sur chaque point de fonctionnement aux mêmes conditions thermodynamiques (mêmes pression et température). L'allumage est réalisé par une bougie dont les électrodes sont écartées de 1 mm et son avance a été optimisée afin de maximiser la PMI (Pression moyenne indiquée) pour le carburant qui est le plus lent à brûler, soit l'isooctane (4.9 bars de PMI pour la richesse de 1 et 4.1 bars de PMI pour la richesse de 0.8).

Dans le Tableau 4-2, sont résumés les paramètres fixés pour réaliser ces points de fonctionnement.

Tableau 4-2: Points de fonctionnement

| <b>Point</b>                                   | <b>1</b> | <b>2</b> |
|--|----------|----------|
| <b>Rotation du moteur (tr/min)</b>             | 2000     | 2000     |
| <b>Pression d'admission (bars)</b>             | 0.6      | 0.6      |
| <b>Richesse</b>                                | 1        | 0.8      |
| <b>Avance à l'allumage (AvPMH)</b>             | 33       | 42       |
| <b>Nombres d'images acquises</b>               | 40       | 60       |
| <b>Température au moment de l'allumage (K)</b> | 670      | 650      |
| <b>Pression au moment de l'allumage (bars)</b> | 0.49     | 0.37     |

Pour ces deux points, les mélanges d'isooctane/éthanol et isooctane/butanol ont été étudiés pour différentes concentrations d'alcool dans l'isooctane : 0, 25, 50, 75 et 100% en volume. En Annexe VII sur la Figure-A VII-1, l'évolution des pressions cylindres pour les deux points de fonctionnement pour les trois carburants purs est présentée. On remarque bien que les points n'ont pas été optimisés pour chaque carburant, mais justement que l'allumage a été réglé de manière identique pour observer le comportement de la combustion des carburants dans les mêmes conditions thermodynamiques et aérodynamiques au moment de l'allumage.

### 4.3.3 Le système d'acquisition d'images

Les images de propagation de la flamme ont été acquises, via le miroir à 45° monté dans le prolongement du piston, avec une caméra rapide intensifiée Photron APX-i2 couplée avec un objectif Nikon 85 mm, f/1.4. La résolution de l'image était de 256x256 pixels<sup>2</sup> avec une vitesse d'acquisition de 15000 images par seconde. Le grandissement était de 0.271 mm/pixel. Le gain était fixé à 3.7 V et le temps d'ouverture était entre 1000 et 3000 ns (selon le point de fonctionnement), compromis entre l'intensité de la flamme et l'amplification du

bruit. Les premières étapes de la combustion, de l'allumage jusqu'à la zone maximale de visualisation, correspondent à un nombre d'images entre 30 et 50, selon les conditions de richesse. Sur la Figure 4-2, un exemple d'images acquises lors de la première étape de la combustion pour le butanol pur à  $\phi=1.0$  est présenté, avec  $\Delta t_s$ , le temps après l'allumage.

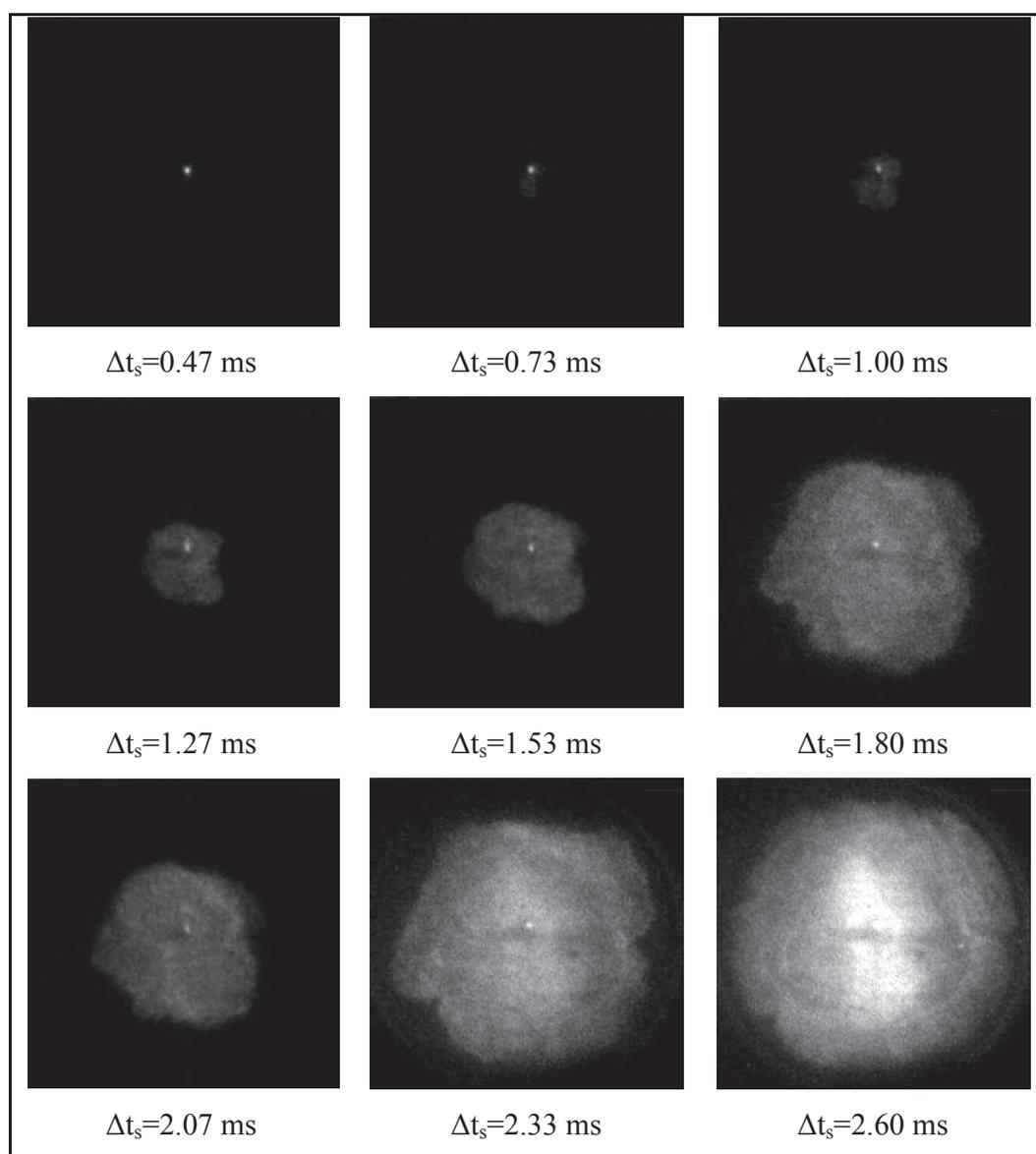


Figure 4-2: Évolution temporelle de la flamme de B100 à  $\phi=1.0$

Pour chaque image, après binarisation et seuillage, la surface de flamme projetée,  $A_E$ , a été déterminée en utilisant un programme de post-traitement réalisé sous Matlab. Les images

dans lesquelles la flamme dépasse une zone supérieure à un rayon de 110 pixels (le rayon du hublot étant de 33 mm, soit 122 pixels) à partir du centre de l'image (le centre du hublot) n'ont pas été prises en compte dans le traitement. La surface maximale de flamme projetée possible,  $A_{f,max}$ , est donc, dans ce cas, 2781 mm<sup>2</sup>.

Dans la suite, la surface de flamme projetée  $A_f$  est adimensionnée par la surface maximale de la flamme projetée  $A_{f,max}$ , comme explicité dans (4.1).

$$A_{norm} = \frac{A_f}{A_{f,max}} \quad (4.1)$$

Puis, l'évolution d' $A_{norm}$  en fonction de l'angle vilebrequin est approximée par un polynôme d'ordre 4, afin de déterminer l'angle vilebrequin pour lequel la flamme a atteint une certaine surface. Cet angle vilebrequin correspondant à une valeur de  $A_{norm}$ , par exemple = 0.1, sera libellé  $\theta_{0,1}$  (en DV ApPMH).

Dans cette étude, les données enregistrées ont été moyennées sur 120 cycles pour chaque test effectué.

#### 4.4 Résultats

Le début de la propagation de la flamme a été choisi comme l'angle pour lequel la flamme occupe 10% de la surface (soit  $A_{norm}=0.1$ ). A ce moment, l'évolution de la flamme n'est plus affectée par l'énergie utilisée pour l'allumage, comme l'ont indiqué Herweg et Maly (1992c), Natarajan *et al.* (2009h) et Bradley *et al.* (1998c), et la fraction massique brûlée correspondante est relativement faible (<2 %). La valeur maximale de  $A_{norm}$  considérée dans nos calculs est  $A_{norm}=0.6$ , valeur atteinte pour l'ensemble des tests effectués qui permet de caractériser les premières phases de développement de la combustion et qui correspond à une fraction massique brûlée supérieure à 10%.

#### 4.4.1 Corrélations entre l'évolution temporelle de la flamme et la fraction massique de gaz brûlés

Comme plusieurs paramètres ( $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion) vont être analysés par la suite, une attention particulière a été apportée à l'étude des liens entre tous ces paramètres, qui représentent d'un côté l'évolution temporelle des phases initiales de la propagation de la combustion, à partir d'images de la combustion, et de l'autre côté l'évolution de la fraction massique brûlée, déterminée à partir de la pression cylindre. Afin de voir si les liens entre ces paramètres sont similaires pour l'ensemble des carburants, les points ne sont pas identifiés selon les mélanges.

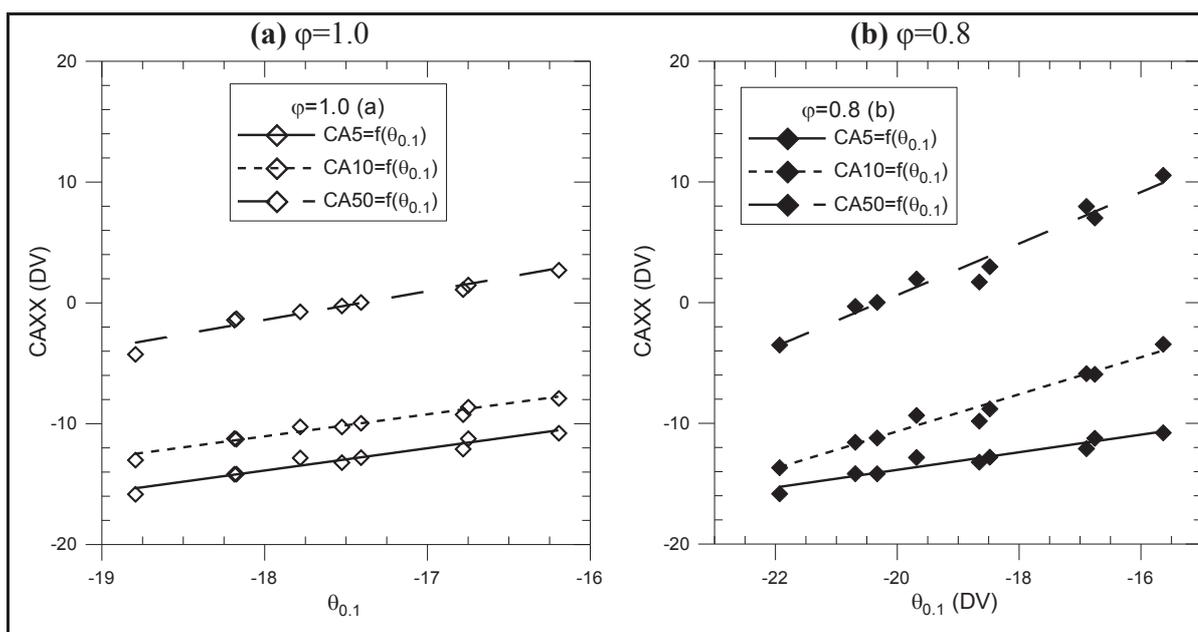


Figure 4-3: Évolution des CA5, CA10 et CA50 en fonction de  $\theta_{0.1}$  à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des mélanges de carburants étudiés

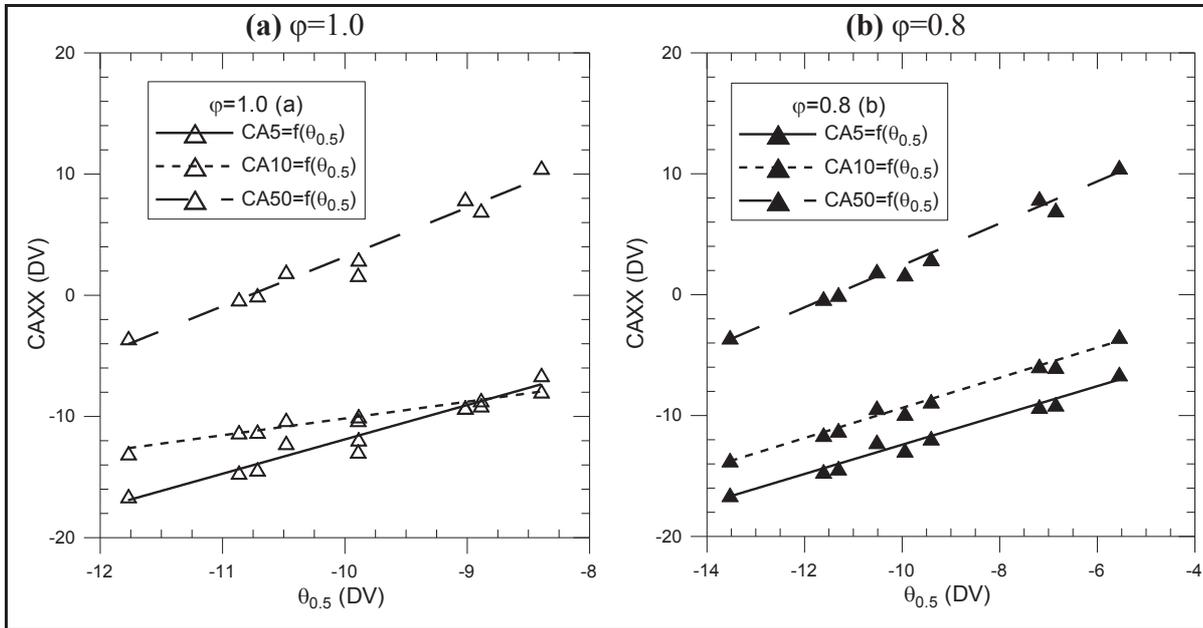


Figure 4-4: Évolution des CA5, CA10 et CA50 en fonction de  $\theta_{0.5}$  à  $\varphi=1.0$  (a) et à  $\varphi=0.8$  (b) pour l'ensemble des mélanges de carburants étudiés

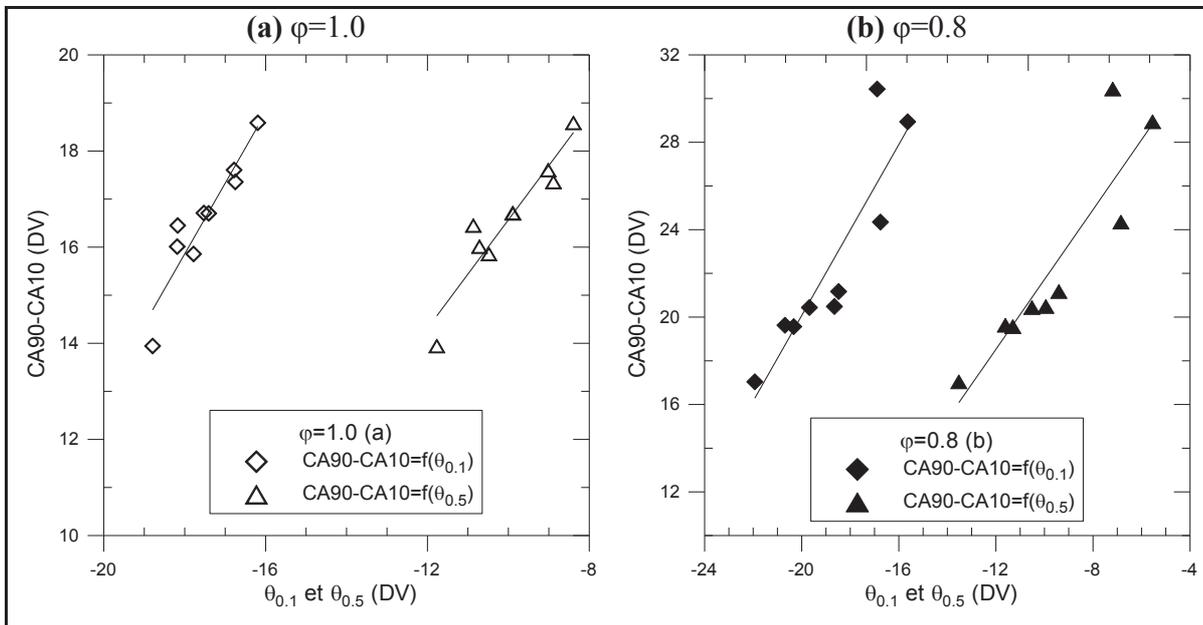


Figure 4-5: Évolution des CA90-CA10 en fonction des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  à  $\varphi=1.0$  (a) et à  $\varphi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés

L'évolution des CA5, CA10 et CA50 en fonction du  $\theta_{0.1}$  est donc présentée sur la Figure 4-3, et en fonction du  $\theta_{0.5}$  sur la Figure 4-4, ainsi que l'évolution du CA90-CA10 en fonction de

$\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  sur la Figure 4-5, pour  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b). La linéarité de ces évolutions permet de montrer que les tous premiers instants de la combustion ( $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$ ) conditionnent fortement le déroulement entier de la combustion. Ceci est cohérent avec ce qui a trouvé dans la littérature par Serras-Pereira *et al.* (2008f), Malcolm *et al.* (2008e) et Aleiferis *et al.* (2008a; 2010a). Cependant, en ce qui concerne la durée totale de la combustion, identifiée par CA90-CA10, la linéarité est moins bonne tout particulièrement en mélange pauvre, pour  $\phi=0.8$ . Donc les tous premiers instants du déroulement de la combustion impactent moins la fin de la combustion.

#### 4.4.2 Évolution temporelle de la flamme

##### 4.4.2.1 Carburants purs

La Figure 4-6 présente l'évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  pour les trois carburants purs à  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b). Pour les deux cas de richesse, la combustion démarre donc plus tôt avec de l'éthanol pur puis avec du butanol par rapport à l'isooctane. On peut aussi noter que la propagation est plus rapide dans le cas des alcools en comparaison avec l'isooctane. Ce phénomène est accentué en mélange pauvre. Ces résultats sont en parfait accord avec ceux obtenus sur les vitesses de combustion laminaire.

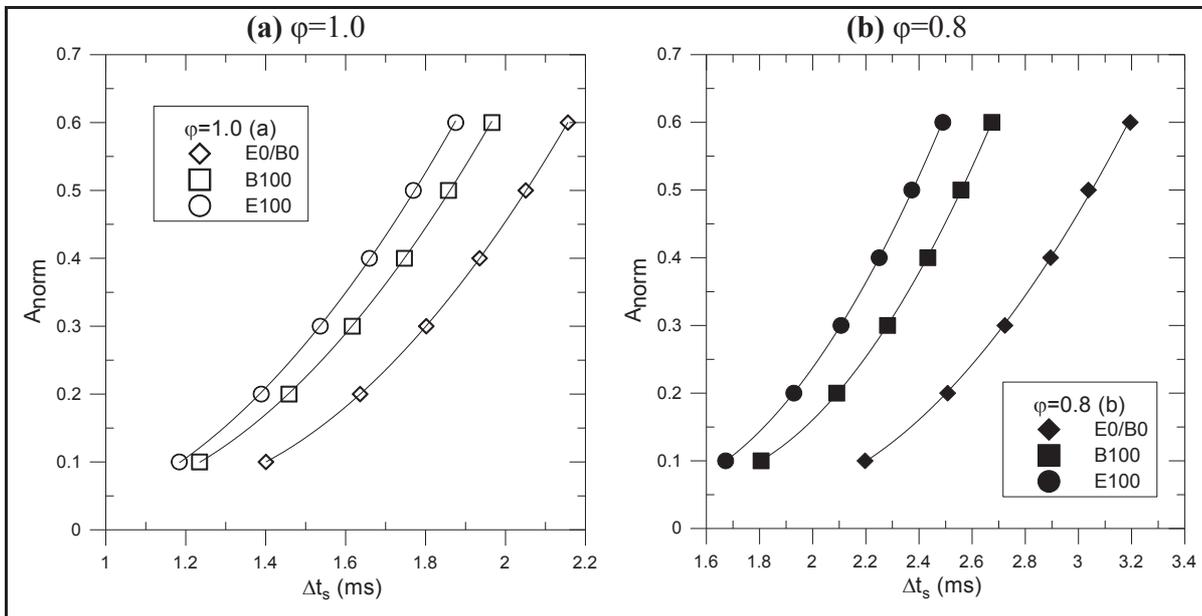


Figure 4-6: Évolution temporelle de  $A_{norm}$  pour les trois carburants purs à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b)

Pour démontrer l'effet d'accélération de la flamme avec les alcools, le paramètre  $\Delta$ , défini comme égal à  $\Delta t_s - \Delta t_{s,ref}$ , est déterminé pour un  $A_{norm}$  et une richesse donnés,  $\Delta t_{s,ref}$  étant pour l'isooctane. L'évolution de  $\Delta$  en fonction de  $A_{norm}$  pour les deux alcools à  $\phi=1.0$  et  $\phi=0.8$  est présentée sur la Figure 4-7. Une décroissance quasi linéaire pour les alcools dans les deux conditions de fonctionnement moteur est observée, plus significative pour  $\phi=0.8$ . Ceci confirme l'accélération de la propagation de la flamme avec les alcools, en particulier l'éthanol, observée précédemment sur la Figure 4-6 par rapport à l'isooctane, surtout à  $\phi=0.8$ . Le fait que les deux alcools brûlent plus vite que l'isooctane est confirmé par Serras-Pereira *et al.* (2008f). Cependant, ils avaient montré que les deux alcools avaient un comportement similaire.

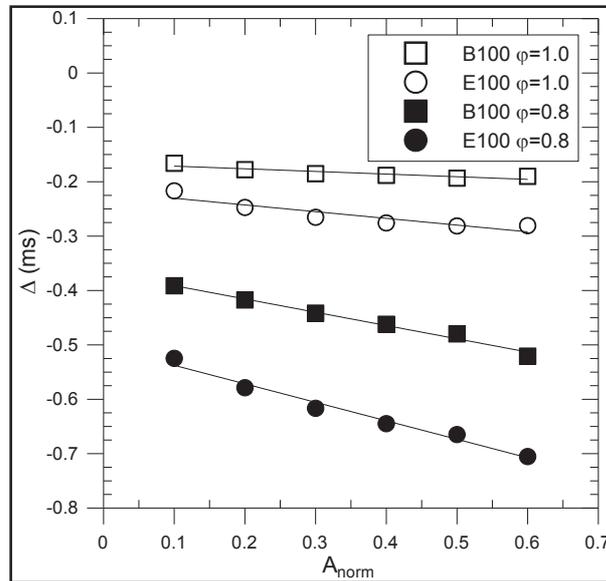


Figure 4-7: Évolution de  $\Delta$  en fonction de  $A_{norm}$  pour les alcools purs à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b)

Tableau 4-3: Écarts relatifs sur  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les deux alcools purs par rapport à l'isooctane

| Carburant                         | $\theta_{0.1}$ | $\theta_{0.5}$ | CA5     | CA10    | CA50    | Durée de combustion<br>(CA90-CA10) |
|-----------------------------------|----------------|----------------|---------|---------|---------|------------------------------------|
| <b>B100 <math>\phi=1.0</math></b> | -11.86%        | -9.43%         | -15.30% | -13.26% | -11.54% | -13.85%                            |
| <b>E100 <math>\phi=1.0</math></b> | -15.47%        | -13.72%        | -22.76% | -20.35% | -19.50% | -24.98%                            |
| <b>B100 <math>\phi=0.8</math></b> | -17.81%        | -15.79%        | -21.97% | -20.13% | -20.03% | -32.39%                            |
| <b>E100 <math>\phi=0.8</math></b> | -23.89%        | -21.89%        | -28.20% | -26.52% | -26.76% | -41.13%                            |

Comme un écart significatif sur les étapes initiales de la propagation de la flamme entre les trois carburants purs a été observé, il est intéressant de voir si ces écarts se retrouvent tout au long du déroulement de la combustion ou non. Pour cela, les écarts relatifs entre chacun des deux alcools et l'isooctane pour  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 ainsi que la durée totale de la combustion CA90-CA10, sont présentés dans le Tableau 4-3. Globalement sur l'ensemble des paramètres étudiés, les écarts relatifs sont plus importants pour l'éthanol que pour le

butanol, et ils sont, de plus, accentués en mélange pauvre, comme on pouvait s'y attendre vue les évolutions de  $A_{norm}$  et de  $\Delta$  sur les Figure 4-6 et Figure 4-7.

Pour les deux alcools et ce pour les deux points de fonctionnement du moteur, la même tendance est observée, à savoir que les écarts relatifs sur  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  sont un peu plus faibles que les écarts relatifs sur les CA5, CA10 et CA50. Ceci signifie que ce sont les premières étapes de la propagation de la flamme qui dictent le déroulement de la combustion.

Pour les écarts sur le CA5 et le CA10, ceci s'explique par le fait que  $\theta_{0.1}$  correspond à environ 2% de la fraction massique brûlée et  $\theta_{0.5}$  correspond à un peu moins de 10% de la fraction massique brûlée. Alors, ils sont très proches du CA5 et CA10, d'où les liens étroits entre le CA5 et CA10 et les  $\theta$  ici.

En ce qui concerne les écarts sur le CA50, la combustion se déroule dans un milieu à pression élevée. Or, l'étude des vitesses de combustion laminaire nous a montré que les valeurs de vitesse étaient de plus en plus proches pour les 3 carburants à une pression élevée. Ceci explique le peu d'évolution de la vitesse de propagation de flamme dans cette phase principale de la combustion et que les écarts restent constants sur le CA50 entre les alcools et l'isooctane.

En ce qui concerne la durée de combustion, représentée par la différence entre le CA90 et le CA10, peu d'évolution dans les écarts sont observés en particulier avec les CA5, CA10 et CA50 à  $\phi=1.0$ , ce qui s'explique par le fait qu'en vitesse de combustion laminaire, il y ait peu d'écart à haute pression entre les carburants. Cependant, des écarts presque deux fois plus importants sont notés entre la durée de combustion et les  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$ , ainsi qu'avec le CA5, CA10 et CA50, à  $\phi=0.8$ . Mais, comme le CA5, CA10 et CA50 sont toujours fortement corrélés avec les  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (Figure 4-3 et Figure 4-4), on peut supposer que la combustion avec l'isooctane se détériore par la suite tandis que celle des alcools se maintient bien, ce qui expliquerait les écarts importants sur les écarts relatifs entre la durée de combustion et les autres paramètres. Ceci conforterait l'idée que les alcools ont un comportement plus stable que l'isooctane en mélange pauvre.

Cependant, pour les  $\theta$ , comme pour les CAXX, les écarts tendent à diminuer légèrement avec la propagation de la combustion pour les deux alcools et les deux richesses, ce qui signifie que l'impact des premières étapes de la propagation de la combustion semble diminuer légèrement avec l'avancée de la combustion.

#### 4.4.2.2 Mélanges isooctane/éthanol

L'évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  (a) et celle de  $\Delta$  en fonction de  $A_{\text{norm}}$  (b) pour les mélanges isooctane/éthanol à  $\varphi=1.0$  sont présentées sur la Figure 4-8. Une augmentation quasi-linéaire de la vitesse de propagation de la flamme à iso- $A_{\text{norm}}$  est observée avec l'ajout d'éthanol sur la Figure 4-8 (a), ce qui est confirmée par Figure 4-8 (b), alors qu'une évolution plutôt de type exponentiel avait été observée pour les vitesses de combustion laminaire. Sur la Figure 4-8 (b), le E25 a un écart  $\Delta$  constant par rapport à l'isooctane, cet écart augmentant avec l'ajout d'éthanol. Donc l'ajout d'éthanol engendre une accélération de la propagation de flamme.

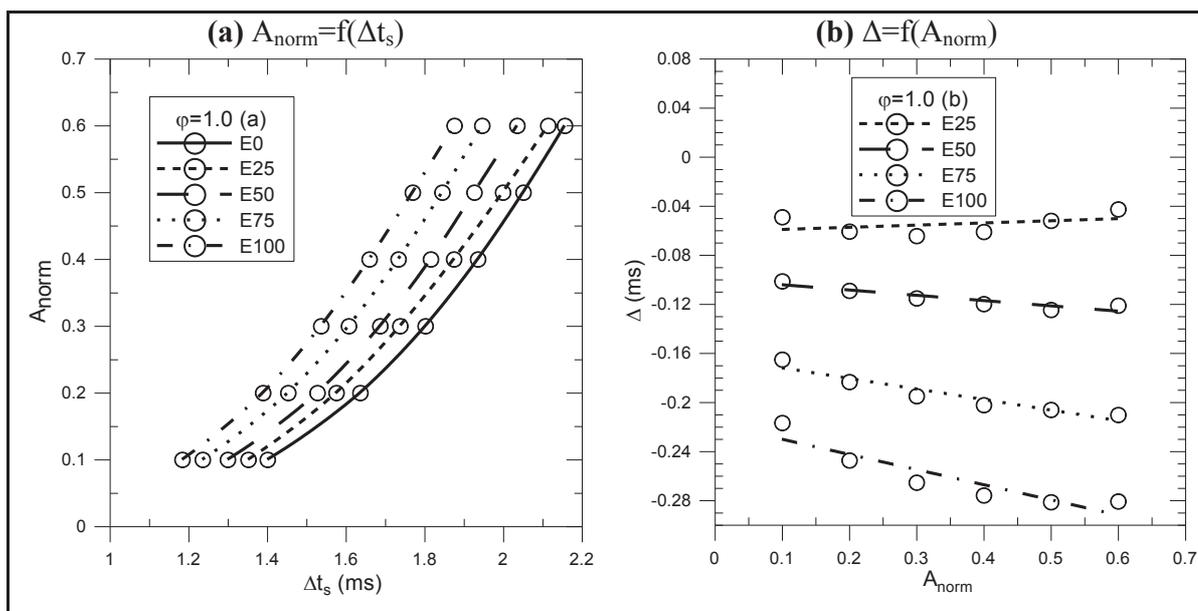


Figure 4-8: Évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  (a) et évolution de  $\Delta$  en fonction de  $A_{\text{norm}}$  (b) pour les mélanges isooctane/éthanol à  $\varphi=1.0$

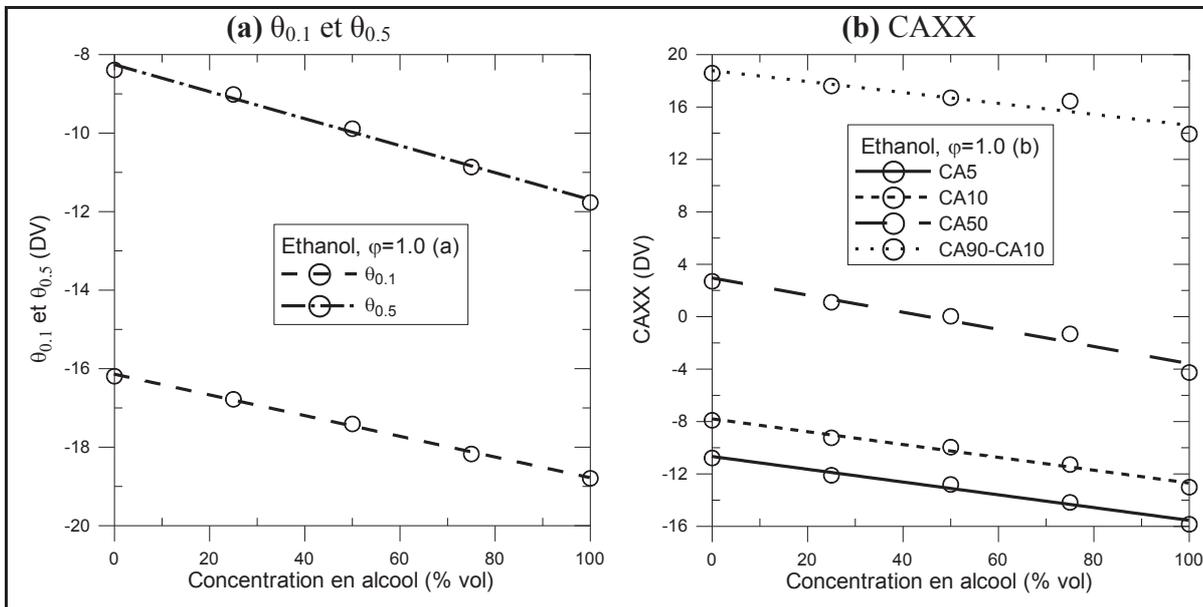


Figure 4-9: Évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges iso-octane/éthanol et  $\phi=1.0$

Tableau 4-4: Écarts relatifs sur  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les mélanges iso-octane/éthanol par rapport à l'iso-octane pour  $\phi=1.0$

| Pourcentage d'alcool | $\theta_{0.1}$ | $\theta_{0.5}$ | CA5     | CA10    | CA50    | Durée de combustion (CA90-CA10) |
|----------------------|----------------|----------------|---------|---------|---------|---------------------------------|
| 25                   | -3.50%         | -2.53%         | -5.94%  | -5.34%  | -4.48%  | -5.28%                          |
| 50                   | -7.23%         | -6.08%         | -9.10%  | -8.18%  | -7.47%  | -10.13%                         |
| 75                   | -11.79%        | -10.05%        | -15.25% | -13.46% | -11.24% | -11.49%                         |
| 100                  | -15.47%        | -13.72%        | -22.76% | -20.35% | -19.50% | -24.98%                         |

L'évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges iso-octane/éthanol à  $\phi=1.0$  est présentée sur la Figure 4-9, et les écarts relatifs par rapport à l'iso-octane qui y sont liés sont présentés dans le Tableau 4-4. Une décroissance linéaire de l'ensemble des paramètres étudiés est notée avec l'ajout d'éthanol, ce qui est confirmé par l'augmentation des écarts relatifs des différents paramètres étudiés avec l'ajout d'éthanol. Ceci est lié à la vitesse de combustion qui augmente avec l'ajout d'éthanol. Les écarts relatifs de  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  sont un peu

plus faibles que les écarts relatifs de CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion. Cependant, que ce soit pour les  $\theta$  ou CAXX, les écarts relatifs diminuent avec la propagation de la combustion. Ceci confirme bien la première tendance observée avec les carburants purs sur le fait que les premières étapes de la combustion pilotent majoritairement la combustion. Mais, il faut noter que cette influence diminue légèrement avec la propagation de la combustion, même si ce n'est pas évident de la constater sur toute la durée de la combustion avec les écarts relatifs sur la durée de combustion, qui restent élevés en particulier pour l'éthanol.

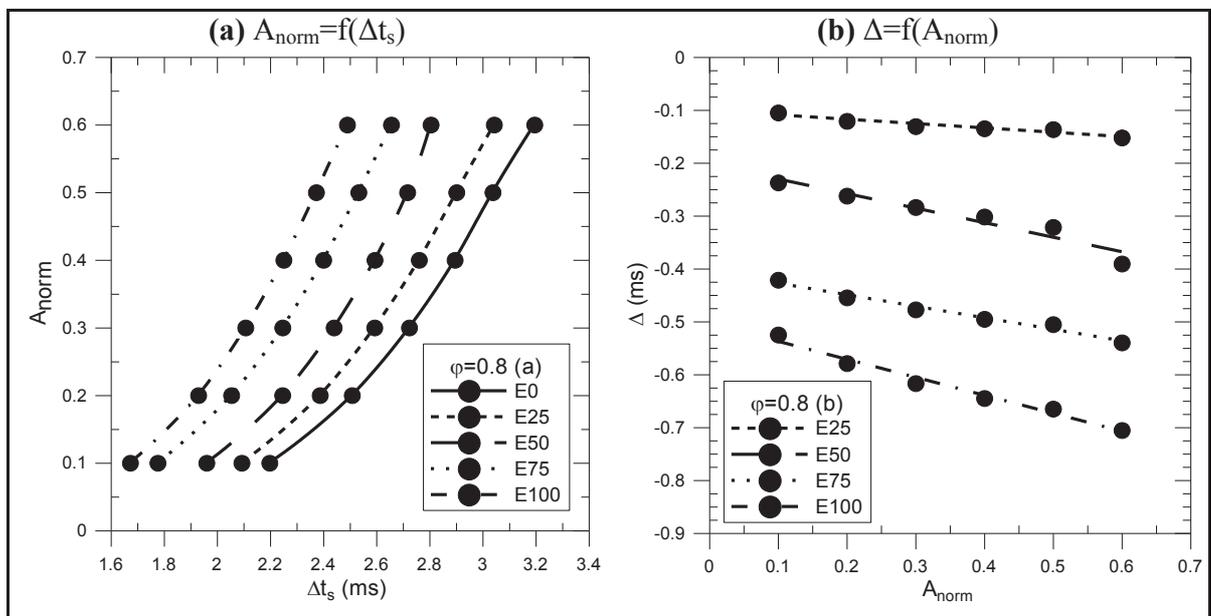


Figure 4-10: Évolution temporelle de  $A_{norm}$  (a) et évolution de  $\Delta$  en fonction de  $A_{norm}$  (b) pour les mélanges iso-octane/éthanol à  $\phi=0.8$

Sur la Figure 4-10, l'évolution temporelle de  $A_{norm}$  (a) et celle de  $\Delta$  en fonction de  $A_{norm}$  (b) pour les mélanges iso-octane/éthanol sont présentées mais pour  $\phi=0.8$ . Les mêmes tendances que celles observées pour  $\phi=1.0$  se retrouvent mais amplifiées, puisqu'une augmentation quasi linéaire de la vitesse de propagation de la flamme à iso- $A_{norm}$  est observée avec l'ajout d'éthanol sur la Figure 4-10 (a). De même sur la Figure 4-10 (b), où avec l'ajout d'éthanol, la différence  $\Delta$  augmente de plus en plus en fonction de  $A_{norm}$ . Au maximum, un  $\Delta$  de -0.7 est atteint à  $\phi=0.8$ , alors qu'à  $\phi=1.0$ , seulement un  $\Delta$  de -0.3 avait été obtenu. Donc l'ajout

d'éthanol engendre une accélération de la propagation de flamme, de manière plus conséquent en mélange pauvre qu'en stœchiométrique, confirmant ainsi la meilleure stabilité de la combustion avec des mélanges d'éthanol en mélange pauvre qu'avec l'isooctane pur.

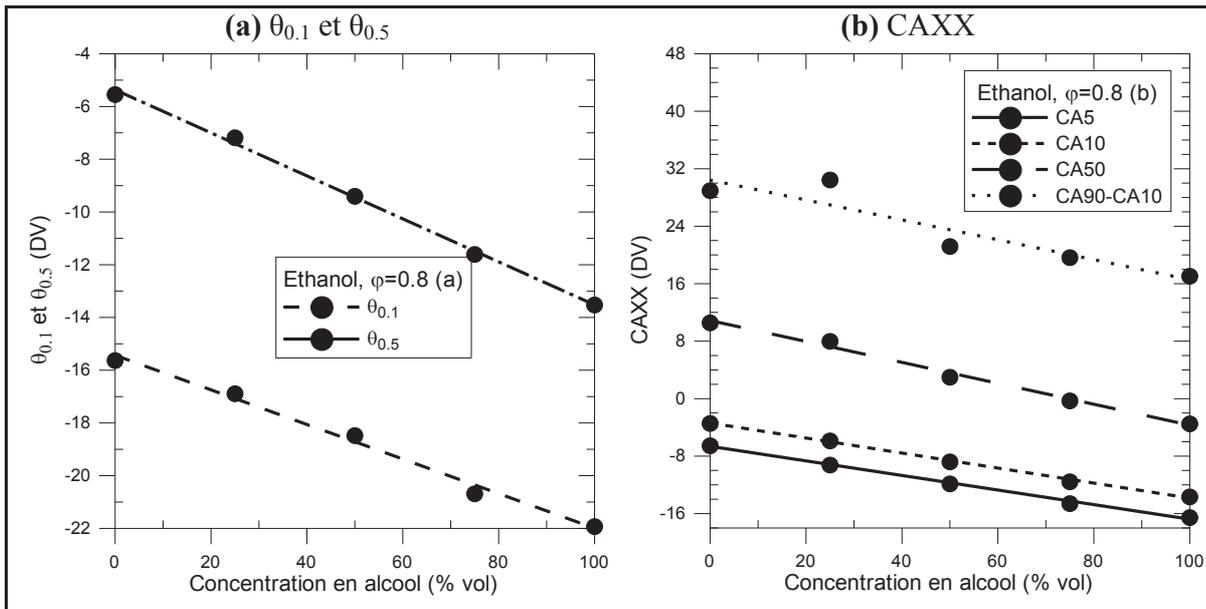


Figure 4-11: Évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/éthanol pour  $\phi=0.8$

Tableau 4-5: Écarts relatifs sur  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/éthanol par rapport à l'isooctane pour  $\phi=0.8$

| Pourcentage d'alcool | $\theta_{0.1}$ | $\theta_{0.5}$ | CA5     | CA10    | CA50    | Durée de combustion (CA90-CA10) |
|----------------------|----------------|----------------|---------|---------|---------|---------------------------------|
| 25                   | -4.78%         | -4.49%         | -7.58%  | -6.30%  | -4.91%  | 5.18%                           |
| 50                   | -10.79%        | -10.58%        | -14.97% | -13.88% | -14.41% | -26.84%                         |
| 75                   | -19.17%        | -16.63%        | -22.72% | -21.07% | -20.67% | -32.18%                         |
| 100                  | -23.89%        | -21.89%        | -28.20% | -26.52% | -26.76% | -41.13%                         |

L'évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/éthanol à  $\phi=0.8$  est tracée sur la Figure 4-11, et dans le Tableau 4-5, les écarts relatifs par rapport à l'isooctane pour ces

paramètres sont présentés. L'ensemble des écarts relatifs notés ici augmente de plus en plus avec l'ajout d'éthanol comme pour  $\varphi=1.0$ , ce qui est cohérent avec la diminution linéaire des paramètres étudiés, et qui correspond à une augmentation de la vitesse de combustion avec l'ajout d'éthanol. Cependant, dans leur grande majorité, ces écarts sont plus grands qu'à  $\varphi=1.0$ , donc l'impact de l'éthanol est plus important dans le cas des mélanges pauvres. Comme pour  $\varphi=1.0$ , les écarts relatifs de  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  sont un peu plus faibles que les écarts relatifs de CA5, CA10 et CA50, mais pas pour la durée de combustion, qui a un écart presque deux fois plus important que les autres paramètres. De plus, les écarts relatifs des paramètres  $\theta$  et CAXX diminuent légèrement avec l'avancé de la combustion. Ceci confirme que les premières étapes de la combustion ont une moindre importance sur le reste de la combustion et que l'éthanol semble plus stable que l'isooctane en mélange pauvre.

Les tendances observées sur la baisse du CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion en mélange pauvre et stœchiométrique avec l'ajout d'éthanol sont confirmées par Schifter *et al.* (2011m) et Turner *et al.* (2011n). Cependant, Taylor *et al.* (1996b), Varde *et al.* (2007i) ont trouvé des conclusions différentes, l'avance à l'allumage étant optimisé pour chaque carburant, d'où des conditions thermodynamiques différentes au moment de l'allumage. Malcolm *et al.* (2008e) et Aleiferis *et al.* (2008a) avaient montré qu'en mélange stœchiométrique le E85 brûlait plus vite que l'isooctane, ce qui est conforme à nos résultats, mais que le E25 était plus lent. En mélange pauvre, aucune tendance n'avait été trouvée pour le E25, et quant au E85, il brûlait plus lentement que l'isooctane, ce qui est contraire à nos résultats.

#### 4.4.2.3 Mélanges isooctane/butanol

L'évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  (a) et celle de  $\Delta$  en fonction de  $A_{\text{norm}}$  (b) pour les mélanges isooctane/butanol à  $\varphi=1.0$  sont présentées sur la Figure 4-12. L'écart entre le butanol et l'isooctane étant plus faible que celui entre l'éthanol et l'isooctane, l'augmentation de la vitesse de propagation de la flamme à iso- $A_{\text{norm}}$  est moins conséquente avec l'ajout de butanol. Elle ne semble pas linéaire, contrairement à ce qui avait été observé sur les vitesses

de combustion laminaire, où une augmentation linéaire avait été notée. D'ailleurs cet effet moins important est clairement identifiable sur la Figure 4-12 (b), où seulement pour le B75 et le B100, une réelle augmentation de l'écart peut être notée. Par ailleurs, Malcolm *et al.* (2008e) avaient eux-aussi noté une conduite similaire entre l'isooctane et le B25. Comparé à l'éthanol, le butanol a des effets moins significatifs sur la propagation de flamme, en particulier pour les faibles concentrations, malgré que celle-ci augmente avec l'ajout de butanol.

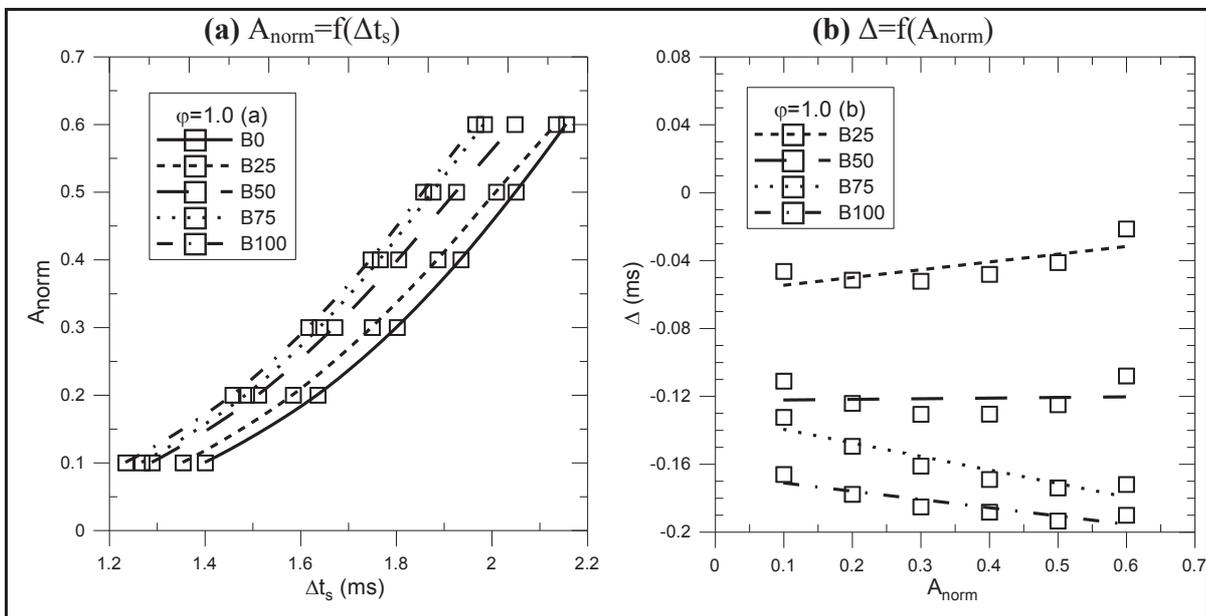


Figure 4-12 : Évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  (a) et évolution de  $\Delta$  en fonction de  $A_{\text{norm}}$  (b) pour les mélanges isooctane/butanol à  $\phi=1.0$

L'évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion (b) pour les mélanges isooctane/butanol à  $\phi=1.0$  est tracée sur la Figure 4-13, et les écarts relatifs liés à ces paramètres sont présentés dans le Tableau 4-6. Une diminution de ces paramètres avec l'ajout de butanol est notée, ce qui est cohérent avec l'augmentation des écarts relatifs des différents paramètres étudiés avec l'ajout de butanol. Tout cela correspond avec le fait que l'ajout de butanol augmente la vitesse de combustion. Dans le même temps, les écarts relatifs de  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  sont relativement similaires ou légèrement plus faibles que les écarts relatifs de CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion. Ceci montre bien que les tendances

observées avec les carburants purs et les mélanges isooctane/éthanol à  $\phi=1.0$ , sur le fait que les premières étapes de la combustion dirigent le reste de la combustion, se retrouvent aussi ici. On retrouve aussi la légère baisse des écarts relatifs des paramètres  $\theta$  et CAXX avec la propagation de la combustion, qui met en évidence que ces premières étapes de la combustion voient leur influence diminuer avec l'avancée de la combustion.

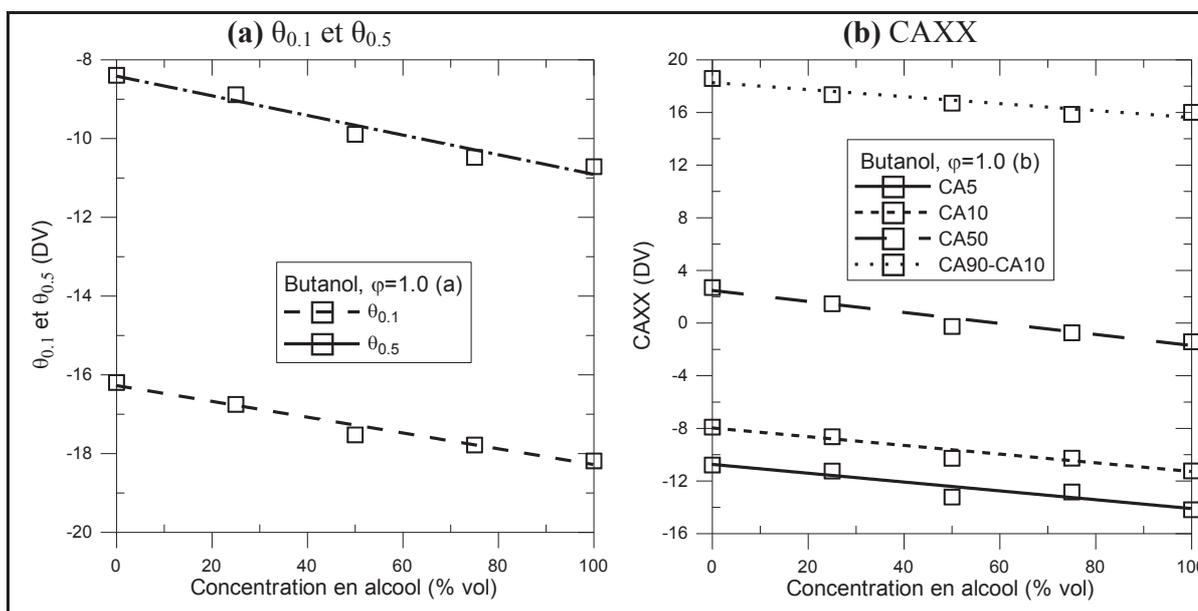


Figure 4-13: Évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/butanol pour  $\phi=1.0$

Tableau 4-6: Écarts relatifs sur  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/butanol par rapport à l'isooctane pour  $\phi=1.0$

| Pourcentage d'alcool | $\theta_{0.1}$ | $\theta_{0.5}$ | CA5     | CA10    | CA50    | Durée de combustion (CA90-CA10) |
|----------------------|----------------|----------------|---------|---------|---------|---------------------------------|
| 25                   | -3.31%         | -2.01%         | -2.06%  | -2.91%  | -3.44%  | -6.62%                          |
| 50                   | -7.93%         | -6.09%         | -10.96% | -9.42%  | -8.28%  | -10.10%                         |
| 75                   | -9.45%         | -8.48%         | -9.23%  | -9.39%  | -9.64%  | -14.67%                         |
| 100                  | -11.86%        | -9.43%         | -15.30% | -13.26% | -11.54% | -13.85%                         |

Sur la Figure 4-14, l'évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  (a) et celle de  $\Delta$  en fonction de  $A_{\text{norm}}$  (b) pour les mélanges isooctane/butanol sont présentées mais pour  $\phi=0.8$ . Une augmentation non-linéaire de la vitesse de propagation de la flamme à iso- $A_{\text{norm}}$  est observée sur la Figure 4-14 (a). Cependant, l'écart observé entre le B25 et le B50, ainsi que le fait que le B50, le B75 et le B100 soient si proches paraît surprenant, car ceci n'est pas observé ni dans les vitesses de combustion laminaire, ni sur les tendances observées précédemment à  $\phi=1.0$ . Cependant, Malcolm *et al.* (2008e) avaient remarqué un comportement similaire entre l'isooctane et le B25. Sur la Figure 4-14 (b), contrairement à précédemment, on retrouve une augmentation de la différence  $\Delta$  de plus en plus importante avec l'ajout de butanol en fonction de  $A_{\text{norm}}$ , comme il avait été constaté pour les mélanges isooctane/éthanol. Donc l'ajout de butanol engendre une accélération de la propagation de flamme, qui est bien plus nette et visible en mélange pauvre qu'à la stœchiométrie, comme pour l'éthanol. En effet, au maximum, un  $\Delta$  de  $-0.5$  est atteint à  $\phi=0.8$ , alors qu'à  $\phi=1.0$ , seulement un  $\Delta$  de  $-0.2$  avait été obtenu. Ceci confirme d'ailleurs la bonne stabilité du butanol en mélange pauvre par rapport à l'isooctane. Cependant, il apparaît que cette stabilité est moins importante dans le cas du butanol que dans le cas de l'éthanol.

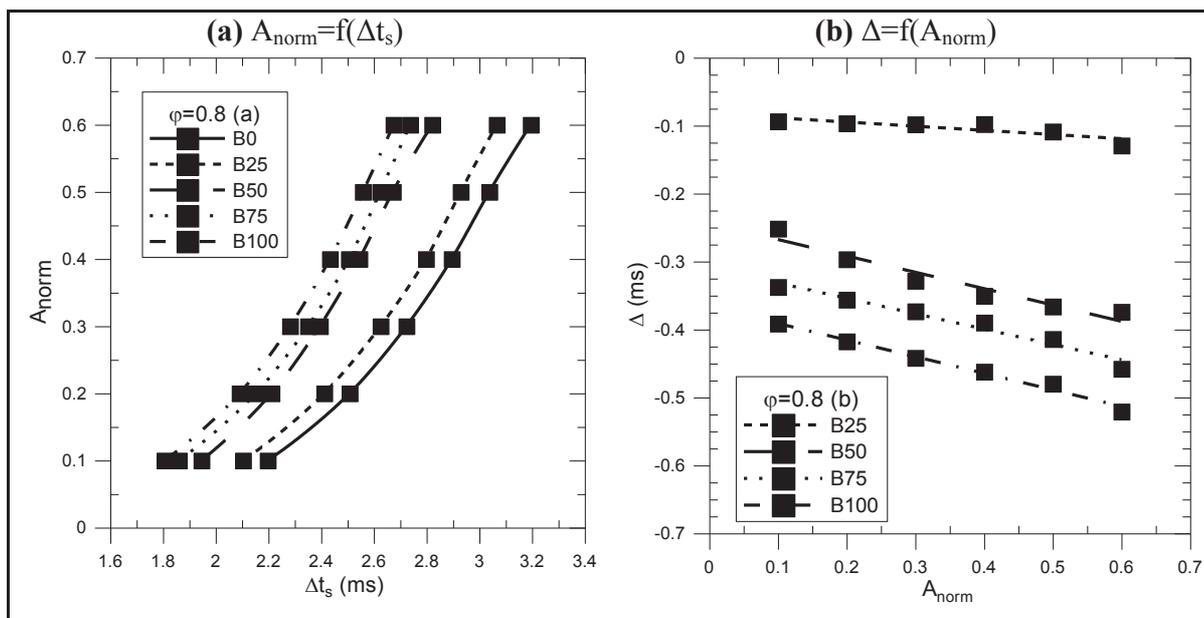


Figure 4-14: Évolution temporelle de  $A_{\text{norm}}$  (a) et évolution de  $\Delta$  en fonction de  $A_{\text{norm}}$  (b) pour les mélanges isooctane/butanol à  $\phi=0.8$

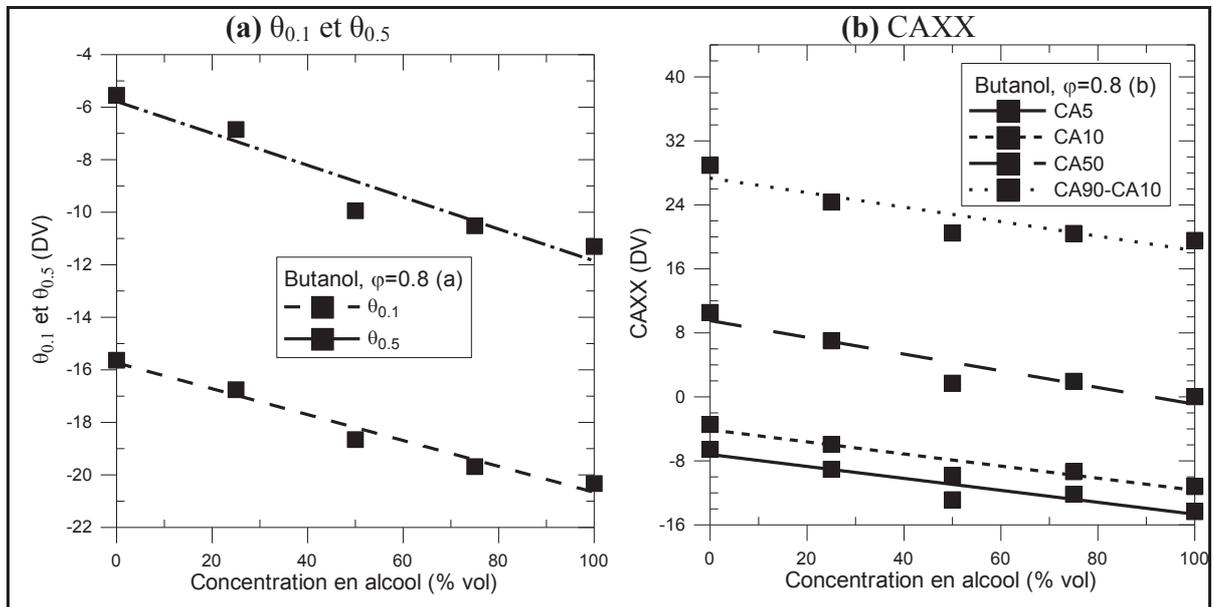


Figure 4-15: Évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/butanol pour  $\phi=0.8$

Tableau 4-7: Écarts relatifs sur  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et la durée de combustion pour les mélanges isooctane/butanol par rapport à l'isooctane pour  $\phi=0.8$

| Pourcentage d'alcool | $\theta_{0.1}$ | $\theta_{0.5}$ | CA5     | CA10    | CA50    | Durée de combustion (CA90-CA10) |
|----------------------|----------------|----------------|---------|---------|---------|---------------------------------|
| 25                   | -4.26%         | -3.57%         | -7.05%  | -6.45%  | -6.72%  | -15.86%                         |
| 50                   | -11.45%        | -12.05%        | -17.79% | -16.51% | -16.82% | -29.22%                         |
| 75                   | -15.36%        | -13.63%        | -15.82% | -15.29% | -16.36% | -29.39%                         |
| 100                  | -17.81%        | -15.79%        | -21.97% | -20.13% | -20.03% | -32.39%                         |

L'évolution des  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  (a) et CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion (b) pour les mélanges isooctane/butanol à  $\phi=0.8$  est tracée sur la Figure 4-15, et les écarts relatifs liés à ces paramètres sont présentés dans le Tableau 4-7. L'ensemble des écarts relatifs notés ici augmente de plus en plus avec l'ajout de butanol comme pour  $\phi=1.0$ , ce que l'on remarque aussi avec la décroissance linéaire des paramètres étudiés avec l'ajout de butanol. Ceci s'explique par le fait que la vitesse de combustion augmente avec l'ajout de butanol. Cependant, dans leur grande majorité, ces écarts sont plus grands qu'à  $\phi=1.0$ , donc l'impact

du butanol est plus important dans le cas des mélanges pauvres, comme c'était le cas pour l'éthanol. Les écarts relatifs de  $\theta_{0,1}$  et  $\theta_{0,5}$  sont un peu plus faibles que les écarts relatifs de CA5, CA10 et CA50, mais pas pour la durée de combustion comme pour les mélanges isooctane/éthanol. Ceci confirme bien le fait que les premières étapes de la combustion ne commandent qu'en partie le reste de la combustion à  $\phi=0.8$ . De plus, leur influence diminue avec l'avancée de la propagation de la combustion, comme on peut le constater avec la baisse des écarts relatifs des paramètres  $\theta$  et CAXX avec la progression de la combustion. En mélange pauvre, comme pour l'éthanol, il doit y avoir une dégradation de la combustion au cours du temps pour l'isooctane, tandis que le butanol se maintient bien, ce qui explique les écarts sur la durée de combustion.

Les tendances observées sur la baisse du CA10, CA50 et de la durée de combustion en mélange pauvre et stœchiométrique avec l'ajout de butanol sont confirmées par Szwaja et Naber (2010h) et Dernothe *et al.* (2010c).

#### 4.4.2.4 Conclusion

Globalement, il a été remarqué que l'ajout d'alcool, en particulier d'éthanol, engendrait une augmentation de la vitesse de propagation de la flamme, ainsi qu'une accélération de ces vitesses par rapport à l'isooctane. Cette observation est par ailleurs amplifiée en mélange pauvre ( $\phi=0.8$ ), en accord avec la meilleure stabilité des alcools par rapport à l'isooctane, surtout dans le cas de l'éthanol. Enfin, les écarts relatifs de  $\theta_{0,1}$  et  $\theta_{0,5}$  sont un peu plus faibles que les écarts relatifs du CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion pour l'ensemble des carburants pour  $\phi=1.0$ , ce qui fait penser que les premières étapes de la combustion pilotent le reste de la combustion, mais cette influence diminue au cours de la combustion. Cependant, à  $\phi=0.8$ , les écarts deviennent très importants, presque le double, pour la durée de combustion par rapport aux autres paramètres, ce qui semble mettre en évidence une dégradation de la combustion de l'isooctane, ainsi qu'une bonne stabilité de celle-ci dans le cas des alcools.

### 4.4.3 Les écart-types

Afin de conclure sur l'effet de l'ajout de l'alcool dans le carburant sur la stabilité de la combustion, les écarts-type pour  $\theta_{0.1}$  (a) et  $\theta_{0.5}$  (b) en fonction de la concentration d'alcool pour les deux alcools et les deux richesses sont tracés sur la Figure 4-16, ainsi que ceux pour CA5 (a), CA10 (b), CA50 (c) et de la durée de combustion (d) sur la Figure 4-17. Cela est résumé dans le Tableau 4-8, où sont présentés les écarts relatifs à la valeur pour l'isooctane sur les écarts-types de  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion.

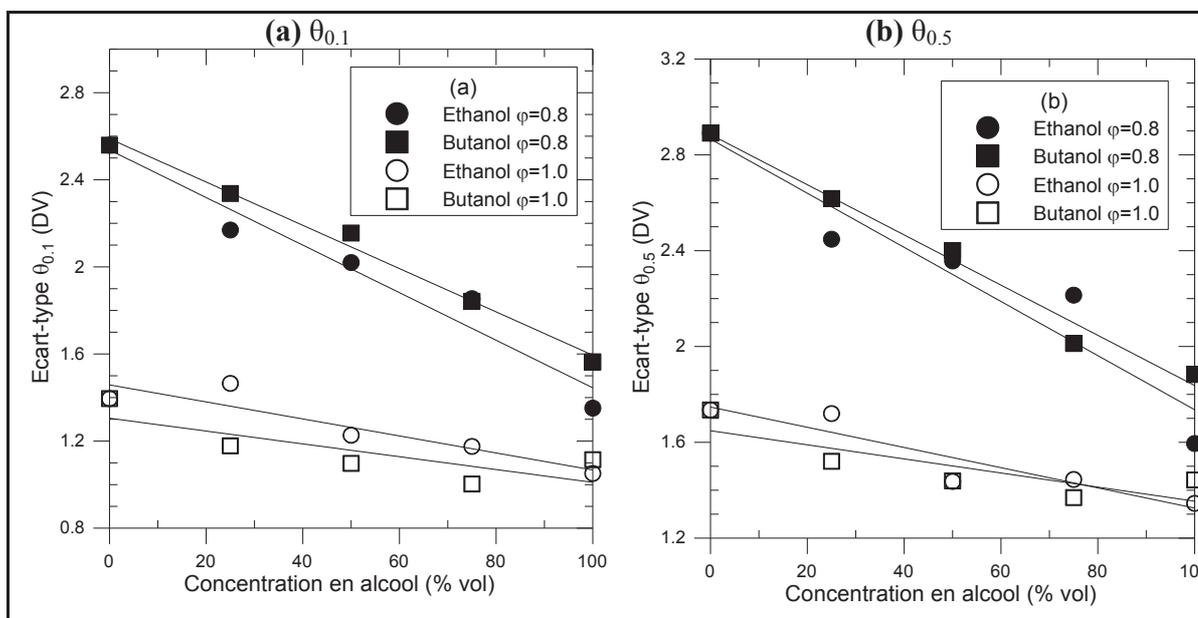


Figure 4-16: Écart-type du  $\theta_{0.1}$  (a) et  $\theta_{0.5}$  (b) en fonction de la concentration en alcool

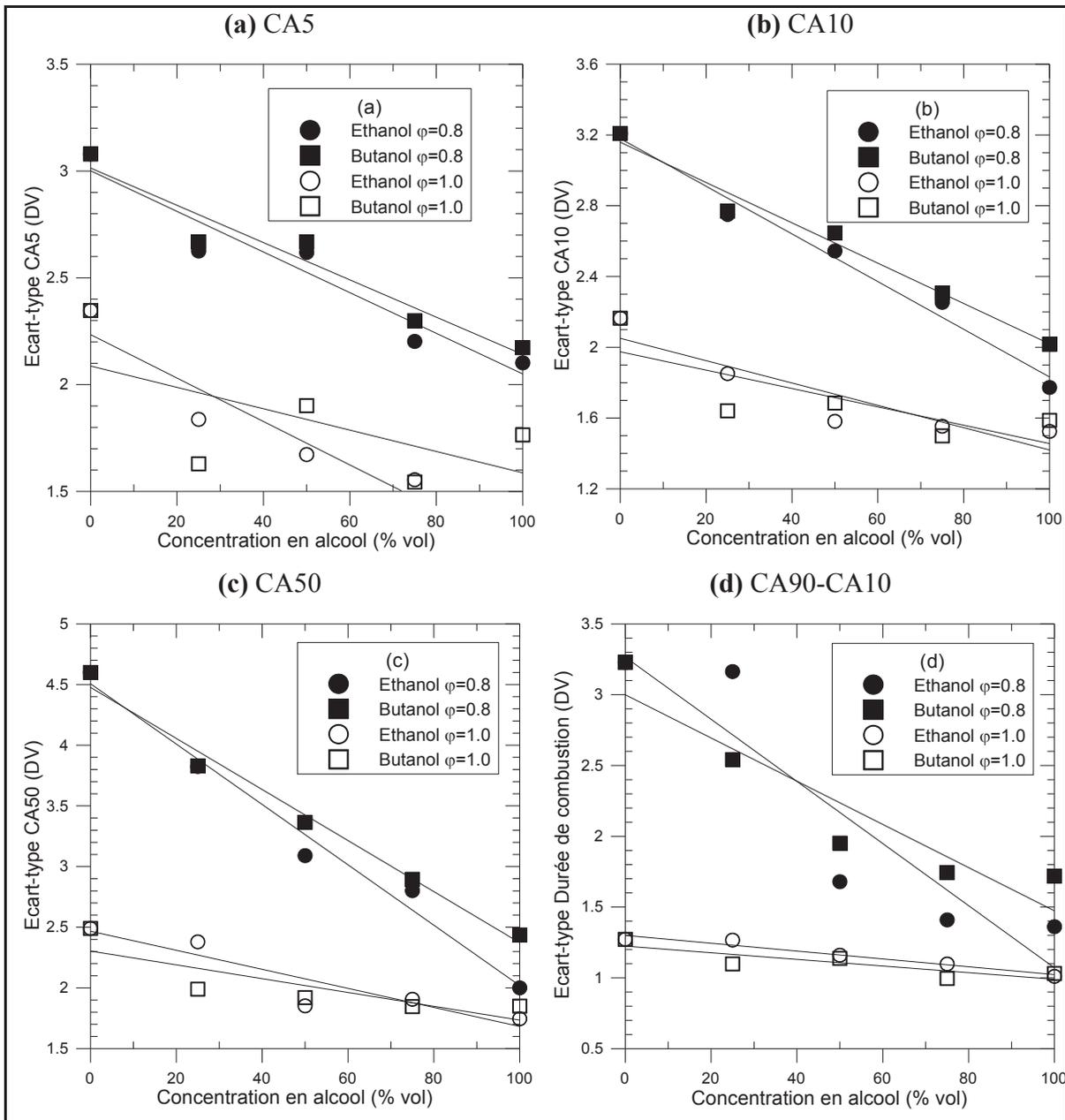


Figure 4-17: Écart-type du CA5 (a), CA10 (b), CA50 (c) et de la Durée de combustion (d) en fonction de la concentration en alcool

Dans le cas de  $\phi=1.0$ , les écarts-type du CA5, CA10 et CA50 diminuent d'environ 26% avec l'ajout du butanol et d'un peu plus de 30% avec l'ajout d'éthanol, alors qu'une baisse identique est obtenue pour  $\theta_{0.5}$  et pour la durée de combustion des deux alcools (environ 21-22%). Enfin, en ce qui concerne l'écart-type du  $\theta_{0.1}$ , la baisse observée est légèrement plus

importante pour le butanol (28%) que pour l'éthanol (25%). Ceci montre qu'avec l'ajout d'alcool la stabilité de la combustion est améliorée en majorité due à l'amélioration de la stabilité des premières étapes de la propagation de la flamme, avec très peu de différences pour les deux alcools.

En ce qui concerne le mélange pauvre, les baisses d'écart-types avec l'ajout d'alcool sont plus importantes, jusqu'à 58 % pour l'éthanol et 48% pour le butanol. L'ajout d'alcool, et en particulier d'éthanol, améliore la stabilité de la combustion que ce soit sur les premières étapes ou dans la phase principale de la combustion. De plus, l'écart relatif sur l'écart-type du CA90-CA10 est le plus important, ce qui confirme une dégradation de la combustion avec l'isooctane au cœur de la combustion.

Tableau 4-8: Écart relatif sur les écarts-type des  $\theta_{0,1}$ ,  $\theta_{0,5}$ , CA5, CA10, CA50 et de la durée de combustion par rapport à l'isooctane pour les deux alcools et les deux richesses

| Écart relatif maximal sur les écart-type (%) |         | $\theta_{0,1}$ | $\theta_{0,5}$ | CA5  | CA10 | CA50 | Durée de Combustion |
|--|---------|----------------|----------------|------|------|------|---------------------|
| $\varphi=0.8$                                | Butanol | -28%           | -30%           | -29% | -37% | -37% | -48%                |
|  | Éthanol | -47%           | -45%           | -32% | -45% | -57% | -58%                |
| $\varphi=1.0$                                | Butanol | -28%           | -21%           | -25% | -27% | -26% | -22%                |
|  | Éthanol | -25%           | -22%           | -34% | -30% | -30% | -21%                |

Cette amélioration de la stabilité de la combustion peut être expliquée par un processus de combustion plus rapide dû à des vitesses de combustion laminaire plus rapides pour les alcools. Ceci a été observé avec l'ajout d'hydrogène par Huang *et al.* (2009d) et par Ji *et al.* (2009f). Tout ceci vient confirmer les premiers résultats aperçus précédemment.

#### 4.4.4 Corrélations avec les vitesses de combustion laminaire

Afin de mieux vérifier l'importance de la vitesse de combustion laminaire sur la combustion turbulente dans le cas de fonctionnement moteur, les résultats des essais expérimentaux sur le

moteur à accès optiques vont être confrontés avec les résultats de vitesses de combustion laminaire pour les pressions initiales de 0.1, 0.3, 0.5 et 1.0 MPa, détaillés dans le Chapitre 2.

En ce sens, on trouve dans la littérature (Heywood (1988a)) une corrélation, qui permet de déterminer la durée (en DV) du développement d'une flamme en fonction de la vitesse de combustion laminaire et est défini par l'équation (4.2) :

$$\Delta_F = f\left(\left(\frac{1}{S_L^0}\right)^{2/3}\right) \quad (4.2)$$

De plus, on s'intéresse également à relier la vitesse de flamme laminaire durant la combustion turbulente telles que CA50-CA10 et CA90-CA10. Pour ce faire la corrélation proposée par Kobayashi *et al.* (1998e) pour le propane permet de relier la vitesse de flamme à la combustion turbulente à la vitesse de flamme laminaire :

$$S_T = f\left((S_L^0)^{0.6}\right) \quad (4.3)$$

Daniele *et al.* (2011e) ont proposé une corrélation similaire pour des gaz de synthèse comme le méthane :

$$S_T = f((S_L^0)^{0.37}) \quad (4.4)$$

Cependant, ces corrélations mettent en évidence le lien entre la vitesse de combustion laminaire et la vitesse de combustion turbulente. Comme cette dernière n'a pas été mesurée dans le cadre de cette thèse, on peut toutefois considérer que la vitesse de flamme turbulente est une fonction de la différence des surfaces de flamme projetée mesurées successivement avec le moteur optique, ainsi la vitesse de combustion turbulente peut s'exprimer par l'équation 4.5 :

$$S_T = f\left(\frac{\Delta A}{\Delta \theta}\right) \quad (4.5)$$

Lorsque l'équation 4.5 est utilisée avec la corrélation de Kobayashi *et al.* (1998e), on obtient l'équation 4.6 :

$$\Delta\theta = f((S_L^0)^{-0.6}) \quad (4.6)$$

Alors que si elle est utilisée avec la corrélation de Daniele *et al.* (2011e), on obtient l'équation 4.7 :

$$\Delta\theta = f((S_L^0)^{-0.37}) \quad (4.7)$$

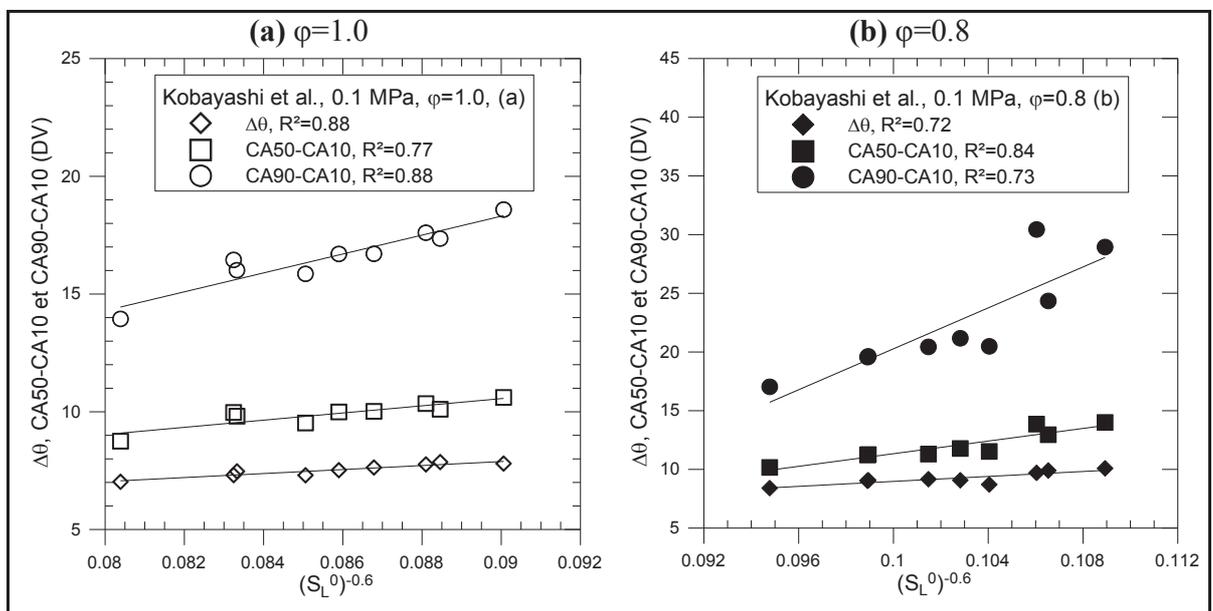


Figure 4-18: Évolution des  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5, CA10 et CA50 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Kobayashi *et al.* (1998e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.1 MPa

La corrélation de Kobayashi *et al.* (1998e) a été utilisée et les évolutions de  $\Delta\theta=\theta_{0.5}-\theta_{0.1}$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 ont été étudiées et tracées sur la Figure 4-18 pour  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b) pour une pression initiale 0.1 MPa, sans distinction de carburants. De très bonnes corrélations ont été trouvées pour les 2 richesses ( $R^2 > 0.72$ ). Ceci nous permet de confirmer tout d'abord qu'il y a une bonne concordance des premières étapes de la propagation de la combustion avec la vitesse de combustion laminaire, ainsi que du développement de la combustion plus généralement, au vu des résultats pour les CA50-CA10 et CA90-CA10.

Cependant, il paraît évident que les conditions thermodynamiques au moment de l'allumage dans le moteur ne sont pas les conditions de pression et de température utilisées pour les vitesses de combustion laminaire. Mais, comme pour chaque point de fonctionnement, la même avance à l'allumage a été utilisée pour l'ensemble des carburants et que seulement les premières étapes de la propagation de flamme ont été considérées, les domaines de température et de pression peuvent être considérés comme similaires pour tous les carburants. De plus, on considère que les vitesses de combustion laminaire de tous les carburants varient de manière quasi identique en fonction de la pression et de la température, comme cela a été expliqué dans la partie corrélation du chapitre 2 pour la pression et dans l'introduction de la partie II pour la température. Ceci explique pourquoi de bonnes corrélations ont été trouvées pour l'ensemble des carburants entre les premières étapes de la propagation de flamme dans le moteur et les vitesses de combustion laminaire. Donc les premières étapes de la propagation d'une flamme sont donc directement corrélées avec la composition initiale du mélange air/carburant (ici richesse et carburant), lorsque les conditions thermodynamiques sont similaires.

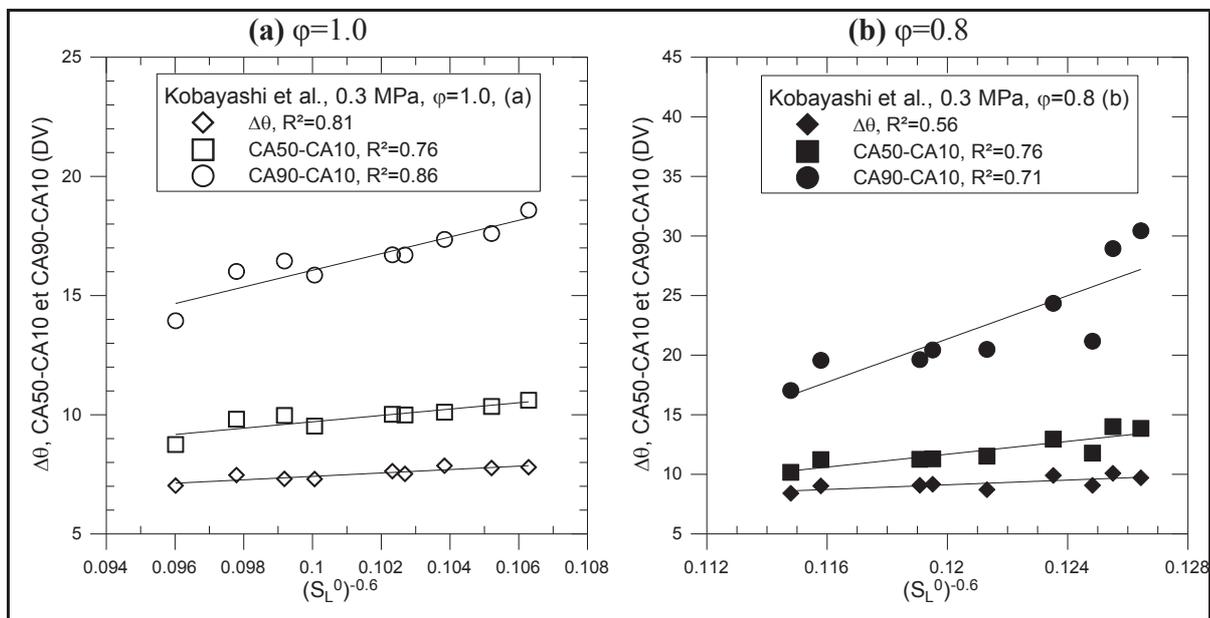


Figure 4-19: Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélations de Kobayashi et al. (1998e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.3 MPa

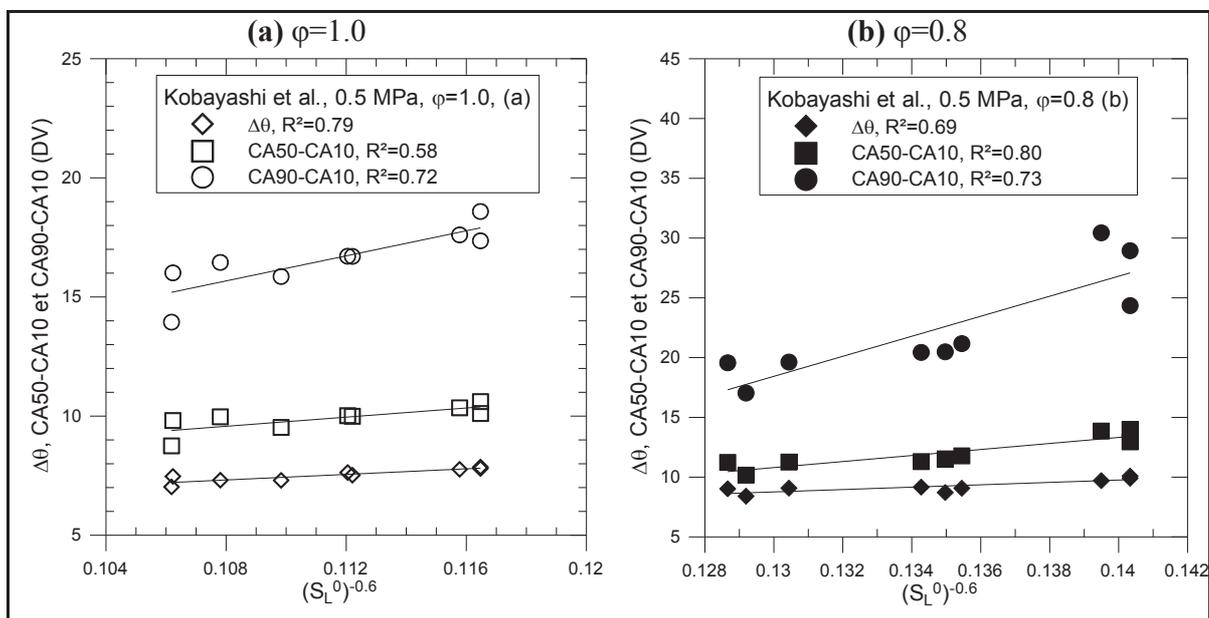


Figure 4-20: Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Kobayashi et al. (1998e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.5 MPa

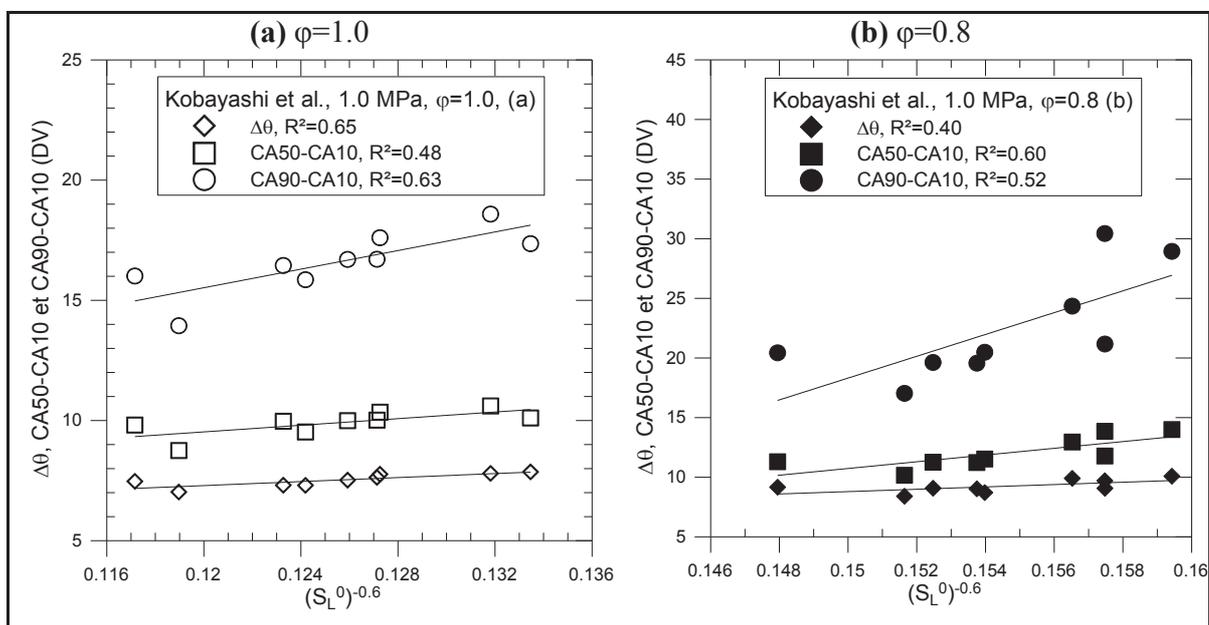


Figure 4-21: Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Kobayashi et al. (1998e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 1.0 MPa

Comme des données sur la vitesse de combustion laminaire avec l'effet de la pression initiale sont disponibles (Chapitre 2), sur les Figure 4-19, Figure 4-20 et Figure 4-21 respectivement pour des pressions initiales 0.3 MPa, 0.5 MPa et 1.0 MPa, les évolutions de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 ont été tracées pour  $\phi=1.0$  (a) et  $\phi=0.8$  (b). Globalement, une dégradation des corrélations est observée, en particulier pour  $\phi=0.8$  (sauf à 0.5 MPa), puisque les coefficients de détermination passent d'environ 0.72-0.84 (0.1 MPa) à 0.40-0.60 (1.0 MPa) pour  $\phi=0.8$  et 0.77-0.88 (0.1 MPa) à 0.48-0.65 (1.0 MPa) pour  $\phi=1.0$ . Cette baisse s'explique par la précision des résultats sur les vitesses de combustion laminaire, qui diminuent avec l'augmentation de la pression. On avait déjà pu le constater qu'en augmentation la pression, certains carburants avaient leurs vitesses de combustion laminaire qui se superposaient par endroit. Donc le fait, que les vitesses de combustion laminaire des carburants se rapprochent avec l'effet de la pression, alors que sur les visualisations de la propagation de la combustion des écarts nets entre les carburants sont observés, engendre donc cette baisse de précision sur les corrélations observées ici.

Enfin, les évolutions de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire avec la corrélation de Daniele *et al.* (2011e) sont présentées en Annexe VII sur les Figure-A VII-2 (0.1 MPa), Figure-A VII-3 (0.3 MPa), Figure-A VII-4 (0.5 MPa) et Figure-A VII-5 (1.0 MPa). Cependant, avec cette corrélation, cela n'a pas permis d'améliorer les coefficients de détermination des droites d de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction des vitesses de combustion laminaire.

Au final, cette analyse met en évidence que la vitesse de combustion laminaire pilote les premières étapes de la propagation de la flamme, ce qui est cohérent avec la littérature (Tagalian et Heywood (1986a), Aleiferis *et al.* (2004a) et Tahtouh *et al.* (2010i)). Il a été remarqué avec l'étude sur le CA50-CA10 et le CA90-CA10 que la vitesse de combustion laminaire pilotait aussi une partie de la combustion.

#### 4.4.5 Corrélations avec le taux d'étirement

Le développement de la flamme sur les toutes premières étapes entre l'allumage et le moment où la flamme se trouve sur un mode «autonome» de propagation est une phase complexe de l'initiation de la combustion. De Soete (1985) et Aleiferis *et al.* (2004a) ont montré que jusqu'à un certain rayon de flamme (en supposant une propagation de type sphérique), la flamme subit de nombreux étirements, qui pilotent les premières étapes de sa propagation voire entraînent son extinction. Un des paramètres caractérisant l'étirement est justement le taux d'étirement de la flamme. Le taux d'étirement  $K$  de la flamme a donc été tracé en fonction du rayon de flamme équivalent pour les trois carburants purs sur la Figure 4-22, respectivement à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b). Pour ce faire, à partir de la surface de flamme projetée  $A_E$ , une surface équivalente circulaire a été calculée, en considérant que la flamme avait une propagation sphérique, comme dans une enceinte à volume constant. A l'aide de cette surface équivalente, un rayon équivalent a été déterminé. C'est ce rayon, qui a permis de calculer le taux d'étirement  $K$ , dont l'équation se trouve dans le Chapitre 2 (2.18).

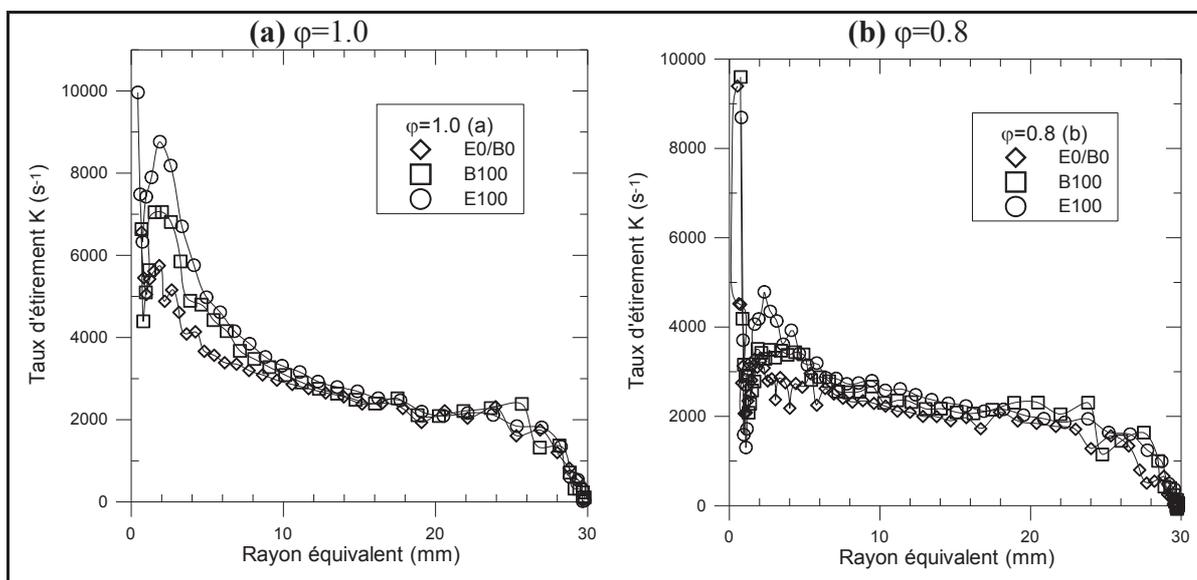


Figure 4-22: Évolution du taux d'étirement  $K$  en fonction du rayon équivalent pour les trois carburants purs à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b)

Que ce soit à  $\phi=1.0$  ou  $\phi=0.8$ , des tendances similaires sont observées, à savoir que l'étirement fluctue de manière importante sur les premières étapes de la propagation de la combustion jusqu'à un rayon équivalent de 5mm, puis diminue avec la propagation de la flamme. Ceci est confirmé par Aleiferis *et al.* (2004a) et montre bien le fait que l'étirement de la flamme a un rôle prépondérant sur les premières étapes de la propagation de la combustion, avant que celui-ci ne voit son importance décroître au profit de la vitesse de combustion laminaire. De plus, aucune tendance réelle ne se dégage entre les trois carburants, ce qui est confirmé par l'évolution du taux d'étirement  $K$  en fonction du rayon équivalent pour les mélanges isooctane/butanol sur la Figure-A VII-6 et les mélanges isooctane/éthanol sur la Figure-A VII-7 (Annexe VII).

Durant les premières étapes de la propagation de la flamme (jusqu'à un rayon équivalent de 5mm), le taux d'étirement de la flamme fluctue énormément et joue un rôle prépondérant sur ce début de combustion, confirmé par les bonnes corrélations entre  $\theta_{0.1}$  et les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés en particulier. Et au-delà de ce rayon de 5 mm, son impact diminue peu à peu au profit de la vitesse de combustion laminaire.

#### 4.4.6 Délais d'allumage

Comme le CA10-CA0 ou le CA10 et le CA5, les  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  correspondent aux toutes premières phases de la combustion, il serait intéressant de les comparer aux délais d'initiation chimique. Pour cela, des simulations numériques ont été réalisées à partir du 'Closed homogeneous batch reactor code' du package Chemkin (1989a). Le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces, utilisé précédemment, a été utilisé de nouveau. La pression a été fixée à 1.0 MPa avec un temps maximal de passage de 1 s, pour différentes températures initiales (1000 à 2500 K), afin de connaître l'influence de la température initiale sur les délais d'initiation. Ces simulations n'ont été faites que pour les alcools purs en comparaison à l'isooctane pour un mélange stœchiométrique sous une forte dilution (la fraction molaire de  $N_2$  varie entre 96.3% et 97.3%). La dilution pour chaque mélange air/carburant a été ajustée

pour obtenir la même énergie chimique initiale. La composition des mélanges est donnée dans le Tableau 4-9.

Tableau 4-9: Composition des mélanges initiaux pour les simulations des délais d'initiation

| Carburant | Fraction molaire de N <sub>2</sub> | Fraction molaire de O <sub>2</sub> | Fraction molaire de carburant |
|-----------|------------------------------------|------------------------------------|-------------------------------|
| Isooctane | 0.973                              | 0.025                              | 0.002                         |
| Butanol   | 0.971                              | 0.025                              | 0.004                         |
| Éthanol   | 0.968                              | 0.024                              | 0.008                         |

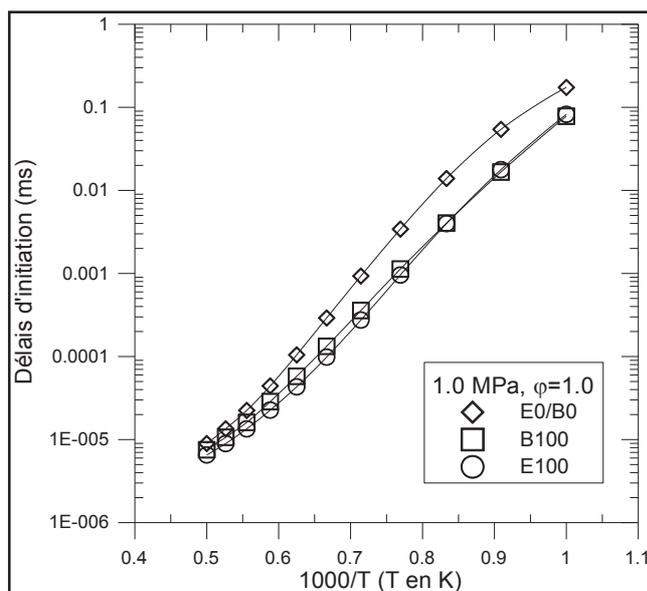


Figure 4-23: Délais d'initiation en fonction de la température pour les trois carburants purs à 1.0 MPa pour  $\phi=1.0$

Sur la Figure 4-23 est tracée l'évolution des délais d'initiation en fonction de la température pour les trois carburants purs (isooctane, butanol et éthanol) à 1.0 MPa pour  $\phi=1.0$ . Le classement des carburants, observé précédemment sur la propagation de la flamme dans le moteur et sur les vitesses de combustion laminaire, est retrouvé : à savoir que l'isooctane est le carburant qui met le plus de temps à s'enflammer, puis le butanol et enfin l'éthanol. Mais à plus faible température, l'éthanol et le butanol ont des délais d'allumage quasiment

identiques. Dans le Tableau 4-3, les écarts relatifs sur le CA5, CA10, et les  $\theta_{0.1}$  et  $\theta_{0.5}$  entre les deux alcools et l'isooctane avaient mis en évidence un démarrage de la propagation de flamme, donc un délai d'initiation, plus difficile pour l'isooctane, confirmé ici par les simulations, même si la différence entre les deux alcools semble moins importante sur le délai d'initiation chimique.

Un carburant, ayant des réactions d'initiation rapides, va avoir un développement des phases initiales de la propagation de la combustion, représentées par  $\theta_{0.1}$ ,  $\theta_{0.5}$ , CA5 et CA10, plus rapides aussi, ce qui va générer des intermédiaires, des radicaux, qui vont entretenir la combustion via les réactions de propagations, globalement représentées par le CA50.

#### 4.5 Conclusion

Dans cette étude, des essais expérimentaux ont été réalisés sur un moteur monocylindre à allumage commandé à accès optiques et à injection indirecte pour des mélanges stœchiométrique et pauvre d'air/isooctane/alcools de 0, 25, 50, 75 et 100%<sub>vol</sub> d'alcool (éthanol ou butanol). L'ajout d'alcool dans l'isooctane permet d'accélérer les phases initiales de la propagation de la flamme, avec pour l'éthanol un impact plus prononcé que le butanol. De plus, les écarts avec l'isooctane deviennent plus importants en mélange pauvre, qu'à la stœchiométrie. Ceci permet de confirmer que les alcools ont un effet positif sur la stabilité de la combustion en mélange pauvre, par rapport à l'isooctane.

Puis, il a été montré à la stœchiométrie que les phases initiales de la propagation de la flamme pilotent le développement de la combustion. En contrepartie, en mélange pauvre, des différences plus importantes ont été notées, ce qui implique qu'ici les premières étapes de la propagation de la flamme pilotent toujours majoritairement le développement de la combustion, mais qu'elles sont moins prépondérantes en fin de la combustion, à cause d'une dégradation de la combustion de l'isooctane. Ceci est cohérent avec les bonnes corrélations, qui ont été trouvées, entre les phases initiales de la propagation de la combustion et son développement.

En étudiant les écart-types de tous les différents paramètres caractérisant ces premières étapes de combustion et la durée globale ( $\theta_{0,1}$ ,  $\theta_{0,5}$ , CA5, CA10, CA50 et CA90-CA10), on peut conclure que l'ajout d'alcool dans l'isooctane diminue fortement les variations. Cela a permis de montrer que l'amélioration de la stabilité de la combustion avec l'ajout d'alcool venait de l'amélioration des étapes initiales de la propagation de la flamme. En mélange pauvre, les mêmes tendances avec l'ajout d'alcool ont été notées. En revanche, il a été mis en évidence que l'écart relatif de l'écart-type du CA90-CA10 était toujours plus important que ceux des autres paramètres, ce qui veut dire que l'amélioration de la stabilité des premières étapes de la propagation de la combustion avec l'ajout d'alcool cause en partie seulement l'amélioration générale de la stabilité de la combustion, en mélange pauvre. Cependant, ceci renforce l'idée que l'isooctane semble se dégrader au cœur de la combustion tandis que les alcools permettent de conserver une bonne stabilité de combustion.

Enfin, il a été mis en évidence que les phases initiales de la propagation de la combustion étaient dans un premier temps pilotées par l'étirement de la flamme jusqu'à un certain rayon équivalent de flamme, avant que ce ne soit les vitesses de combustion laminaire des carburants, qui prennent le relais.



## CHAPITRE 5

### INFLUENCE DE L'ADDITION D'ALCOOLS DANS LE CARBURANT SUR LES ÉMISSIONS POLLUANTES D'UN MOTEUR À ALLUMAGE COMMANDÉ À ISO-PERFORMANCE

#### 5.1 Introduction

Précédemment, l'impact de la chimie des carburants sur les vitesses de combustion laminaire dans une enceinte à volume constant a été étudié et il a été remarqué que ces dernières étaient fortement corrélées avec l'évolution de la propagation de la combustion dans un moteur à allumage commandé. Dans le cas du moteur à accès optiques, l'avance à l'allumage était identique pour l'ensemble des carburants, afin d'observer la propagation du front de flamme pour des conditions thermodynamiques similaires. Mais, dans l'étude sur le moteur opaque, l'avance à l'allumage a été optimisée pour maximiser les performances du moteur en fonction des caractéristiques des carburants. On peut alors s'attendre à avoir à des différences sur l'avance à l'allumage en fonction des carburants. De plus, il a été vu que la stabilité de la combustion était grandement améliorée avec l'ajout d'alcool dans l'isooctane. Or, une plus grande stabilité de la combustion engendre une diminution de certaines émissions de polluants, en particulier les HC. Il est légitime de se demander quel va être l'impact de l'ajout d'alcool dans l'isooctane sur les performances d'un moteur à allumage commandé, ainsi que sur les émissions de polluants réglementés et non-réglementés.

Après un rapide état de l'art, les résultats issus d'essais expérimentaux, menés sur un moteur monocylindre à allumage commandé et injection indirecte sont présentés, afin de quantifier le potentiel des mélanges butanol/isooctane (avec une concentration en alcool de 0, 25, 50, 75 et 100 % en volume) sur la réduction des polluants réglementés (CO, CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> et HC Totaux), et non-réglementés (méthane, acétylène, éthylène, benzène, acétaldéhyde et formaldéhyde), tout en garantissant les performances. Une comparaison avec des résultats obtenus avec des mélanges isooctane/éthanol et avec ceux de la littérature est proposée.

Les polluants non réglementés sont de plus en plus considérés, à cause de leur fort impact :

- sur la formation d’ozone : le CH<sub>4</sub> est 20 fois plus nocif que le CO<sub>2</sub>, le C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, 28 fois plus réactif dans la formation d’ozone que le CH<sub>4</sub>, le CH<sub>2</sub>O, 457 fois et le CH<sub>3</sub>CHO, 320 fois, d’après Lowi et Carter (1990),
- sur la production de particules de suies, qui devient problématique dans le cas des moteurs IDE (Injection Directe Essence en mode stratifié),
- et donc sur le développement des cancers (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, CH<sub>2</sub>O et CH<sub>3</sub>CHO).

On peut de plus noter, que les émissions de CH<sub>2</sub>O ont commencé à être réglementées en Californie par le California Air Resources Board (2010b) qui impose des émissions de CH<sub>2</sub>O maximales de 0.018 g/mile pour les véhicules légers (programme Low-Emission Vehicle II).

## 5.2 État de l’art

Quelques études ont été réalisées pour des mélanges de différents alcools dans l’essence par Furey et King (1982a) et plus récemment par Gautam *et al.* (2000b; 2000c). Cependant, actuellement la plupart des études concernent l’éthanol. Certaines tendances générales se dégagent de ces études :

- Une augmentation de la consommation spécifique de carburant, (Brinkman (1981a); Cataluna *et al.* (2008b); Cinar *et al.* (2006c); Guerrieri *et al.* (1995c); He *et al.* (2003b)).
- Pas de réelle tendance sur les émissions de CO<sub>2</sub>: par exemple, Guerrieri *et al.* (1995c) et Jeuland *et al.* (2004d) ont observé une baisse, alors que Hsieh *et al.* (2002c) une augmentation.
- Dans la majorité des études, une diminution des émissions de HC (Guerrieri *et al.* (1995c); He *et al.* (2003b); Jia *et al.* (2005c); Varde *et al.* (2007i); Zervas *et al.* (2003d)), des émissions de CO (Cinar *et al.* (2006c); Guerrieri *et al.* (1995c); He *et al.* (2003b); Hsieh *et al.* (2002c); Jeuland *et al.* (2004d); Jia *et al.* (2005c); Zervas *et al.* (2003d)) et des émissions de NO<sub>x</sub> (Brinkman (1981a); He *et al.* (2003b); Jia *et al.* (2005c); Varde *et al.* (2007i); Zervas *et al.* (2003d)).

Enfin, en ce qui concerne les émissions de polluants non-réglementés, quelques études montrent qu'avec l'ajout d'éthanol, les émissions de formaldéhydes ( $\text{CH}_2\text{O}$ ) (Guerrieri *et al.* (1995c); Zervas *et al.* (2002e)) augmentent tout comme celles d'acétaldéhydes ( $\text{CH}_3\text{CHO}$ ) (Guerrieri *et al.* (1995c); He *et al.* (2003b); Jia *et al.* (2005c); Zervas *et al.* (2002e)) et d'éthylène ( $\text{C}_2\text{H}_4$ ) (Jia *et al.* (2005c)).

Le butanol a été peu étudié. Les premières études sur les mélanges butanol/essence ont été réalisées par Alasfour (1997a; 1998b; 1998a; 1999a) avec 30% de butanol en volume. Yacoub *et al.* (1998f) ont, eux, étudié des mélanges avec du butanol avec un maximum de 5% en volume. Rice *et al.* (1991) ont testé des mélanges avec 20 % d'éthanol et de butanol dans l'essence dans un moteur 4 cylindres de 2.2L à allumage commandé. Les grandes tendances sont :

- L'ajout de butanol provoque une diminution de la consommation spécifique de carburant par rapport à l'éthanol, qui reste supérieure à celle de l'essence.
- Une forte diminution des émissions de CO a été obtenue pour les deux mélanges.
- Un mélange butanol/essence engendre une plus faible diminution des émissions de HC Totaux.
- Une légère diminution des émissions de NOx a été obtenue pour les deux mélanges.

Dans le même temps, Wallner *et al.* (2009l) ont comparé des mélanges avec 10% d'alcool (éthanol ou butanol) dans l'essence et ont observé une baisse des émissions de NOx avec le butanol, contrairement à l'éthanol.

Récemment, Dernet *et al.* (2010c) ont testé une large plage de mélanges butanol/essence (0, 20, 40, 60 et 80 % en volume de butanol dans l'essence) sur un moteur à allumage commandé et injection indirecte, à 2000 tr/min et 3.2 bars de PMI. Des impacts similaires sur la consommation spécifique de carburant ont été obtenus, mais une augmentation des émissions de CO a été notée. De plus, avec un mélange à 40 % de butanol, les émissions de HC ont été fortement réduites.

On trouve dans la littérature, une seule étude sur l'effet de ces deux alcools, réalisée récemment par Wallner et Frazee (2010k), concernant la mesure des émissions de polluants réglementés et non-réglementés. Des mélanges éthanol/essence (0, 10 et 50 % en volume) et des mélanges butanol/essence (0, 15 et 83 % en volume) ont donc été comparés. Globalement, des différences notables entre les deux alcools ont été relevées, comme par exemple:

- Une diminution des émissions de  $\text{CH}_4$  et de  $\text{C}_2\text{H}_2$  avec l'éthanol, mais pas avec le butanol.
- Une légère augmentation des émissions de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  avec l'addition d'éthanol et de butanol.
- Une légère augmentation des émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$  avec l'ajout d'éthanol et une très forte avec l'ajout de butanol.

Il est donc difficile de conclure sur l'impact de ces alcools sur les émissions de polluants au regard à la littérature, c'est pourquoi nous nous sommes attachés à réaliser une campagne d'essais sur banc d'essais moteur monocylindre pour pouvoir confirmer ou non l'impact de ces alcools.

### **5.3 Montage expérimental**

Les expériences ont été menées sur un moteur monocylindre 4 soupapes (J4S Renault), à allumage commandé avec injection dans la conduite d'admission. Les caractéristiques sont les suivantes: une cylindrée de  $499 \text{ cm}^3$ , un taux de compression de 9.5 avec un alésage, une course et longueur de bielle respectivement de 88 mm, 82 mm et 137 mm. La chambre de combustion est de type en toit, générant ainsi un léger mouvement de Tumble. Ce moteur est couplé à une machine électrique pour maintenir le régime de rotation constant. Les températures d'huile et de liquide de refroidissement ont été fixées à  $80^\circ\text{C}$ .

Le moteur est alimenté par de l'air pressurisé à travers un débitmètre volumique ayant une précision de  $\pm 0.7 \%$  sur le débit instantané. Avant d'arriver dans le port d'admission, l'air, à

température ambiante (23°C), passe dans un plenum pour éviter les oscillations de pression à l'admission. La quantité de carburant liquide est mesurée via un débitmètre massique Brooks Quantum (QMBM) à effet Coriolis dans une gamme de 0 et 8 kg/h, avec une incertitude maximale de  $\pm 1 \%$  sur le débit minimal considéré dans cette étude. Le carburant est pressurisé avec une différence de pression de 3 bars par rapport à la pression d'admission.

Un encodeur optique monté sur le vilebrequin, d'une résolution de 0.1 degré d'angle de vilebrequin, a été utilisé avec un capteur pression AVL en quartz refroidi à l'eau et connecté à un amplificateur de charge pour enregistrer la pression dans le cylindre. La synchronisation des différents signaux de déclenchements (trigger) et des systèmes d'acquisition de données est assurée par une carte compteur. Un ordinateur équipé d'une carte d'acquisition National Instruments permet l'acquisition des données de pression dans le cylindre sur 100 cycles consécutifs.

Une baie d'analyse 5 gaz (Environnement SA) a été utilisée pour mesurer les émissions réglementées ( $O_2$ , HC Totaux, CO,  $CO_2$  et  $NO_x$ ), avec une précision inférieure à 2 % de la valeur mesurée et 1 % de la pleine échelle. Les détails sur les techniques employées pour les mesures de ces émissions sont donnés dans le Tableau 5-1.

Tableau 5-1: Analyseurs utilisées pour mesurer les polluants

| <b>Polluants mesurés</b> | <b>Analyseurs ou techniques de mesures utilisées</b>          |
|--------------------------|---|
| $O_2$                    | Technique de dispersion modale de polarisation (PMD)          |
| HC Totaux                | Graphite 52M-D FID (Détecteur chauffé d'ionisation de flamme) |
| CO et $CO_2$             | MIR 2M NDIR (Méthode infrarouge non-dispersive)               |
| $NO_x$                   | Topaze 32M-S CLD (méthode de la chimiluminescence)            |
| Non-réglémentés          | Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)      |

Pour les polluants non-réglémentés, une baie de type FTIR (Environnement SA) a été utilisée pour mesurer en particulier le  $CH_4$  (Méthane), le  $C_2H_2$  (Acétylène), le  $C_2H_4$  (Éthylène), le

$C_6H_6$  (Benzène), le  $CH_2O$  (Formaldéhyde) et le  $CH_3CHO$  (Acétaldéhyde), avec une précision inférieure à 2 % de la pleine échelle. Le principe de fonctionnement de cet analyseur est d'identifier la composition des gaz et leurs concentrations à partir du spectre de l'échantillon, à l'aide de Transformées de Fourier des intensités de longueurs d'ondes infrarouges. Pendant les essais, la cellule d'échantillonnage de l'analyseur FTIR était nettoyée avec du  $N_2$  sous une pression de  $200 \text{ kPa} \pm 50 \text{ kPa}$  avant les premières mesures et régulièrement pendant les tests (tous les 4 heures en moyenne). L'analyseur était alimenté par des gaz d'échappement à un débit de  $10 \text{ L/min}$  à l'aide d'un tuyau chauffé à  $191^\circ\text{C} \pm 5^\circ\text{C}$ . La pression dans la cellule d'échantillonnage était maintenue constante à  $1013 \text{ mbar} \pm 5 \text{ mbar}$ . L'analyseur FTIR était calibré, entre autres avec les carburants types alcools, pour les composés suivants :  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $H_2O$ ,  $NH_3$ ,  $N_2O$ ,  $CH_4$ ,  $C_2H_2$ ,  $C_2H_4$ ,  $C_2H_6$ ,  $C_4H_6$ , iso-Butane, n-Butane, aromatiques,  $CH_2O$ ,  $CH_3CHO$ ,  $CH_3OH$ ,  $C_2H_5OH$ ,  $HCOOH$ ,  $CH_3COOH$ ,  $SO_2$  et du sulfate de carbone ( $COS$ ). Pour chaque point de fonctionnement, les données étaient acquises pendant 30s, puis moyennées.

#### 5.4 Points d'essais

Deux points moteurs correspondants à ceux utilisés dans les cycles de conduite usuels pour les moteurs à allumage commandé ont été sélectionnés pour cette étude. Afin de s'assurer de la bonne vaporisation du carburant liquide et donc d'une bonne homogénéité du mélange air/carburant dans le cylindre, l'injection a été réalisée à 110 DV (Degré Vilebrequin) AvPMH (avant le Point Mort Haut) combustion, c'est-à-dire quelques degrés après que la soupape d'admission se soit fermée (126 DV AvPMH). Ceci permet d'injecter sur la soupape fermée et de laisser le carburant dans la ligne d'admission durant un cycle moteur entier pour s'assurer de la vaporisation de celui-ci.

Les deux points qui ont été choisis sont :

- le point 1: moyennement chargé, stœchiométrique,
- le point 2: faiblement chargé en mélange pauvre.

Dans le Tableau 5-2, sont résumés les paramètres fixés pour réaliser ces points de fonctionnement. Pour ces deux points, les mélanges d'isooctane/éthanol et isooctane/butanol ont été étudiés pour différentes concentrations d'alcool dans l'isooctane : 0, 25, 50, 75 et 100% en volume.

L'allumage est réalisé par une bougie dont les électrodes sont écartées de 1 mm et son avance a été optimisée afin de maximiser la PMI.

Tableau 5-2: Points de fonctionnement réalisés sur le moteur monocylindre opaque

| Point | PMI (bars) | Rotation du moteur (tr/min) | Pression d'admission (bars) | Richesse | Énergie par cycle (J) | Rendement $\eta$ (%) |
|-------|------------|-----------------------------|-----------------------------|----------|-----------------------|----------------------|
| 1     | 5          | 2000                        | 0.64                        | 1        | 795 ( $\pm 0.6\%$ )   | 32.5 $\pm 0.7\%$     |
| 2     | 3          | 1700                        | 0.5                         | 0.81     | 500 ( $\pm 1\%$ )     | 31.7 $\pm 1.2\%$     |

### 5.5 Impact sur la Performance et le réglage moteur

Dans un premier temps, est présentée l'évolution de l'avance à l'allumage optimale en fonction de la concentration en alcool dans l'isooctane sur la Figure 5-1, afin d'évaluer l'influence de l'ajout d'alcool sur l'avance à l'allumage pour maximiser la PMI. Malgré les différences entre les deux points de fonctionnement, (principalement la charge et la richesse), une diminution similaire de l'avance à l'allumage est observée pour les deux alcools utilisés. Le fait que l'ajout d'alcool dans l'isooctane engendre une augmentation de la vitesse de combustion laminaire (chapitre 2) et une augmentation de la vitesse de propagation de la combustion (chapitre 4) explique très certainement cette tendance.

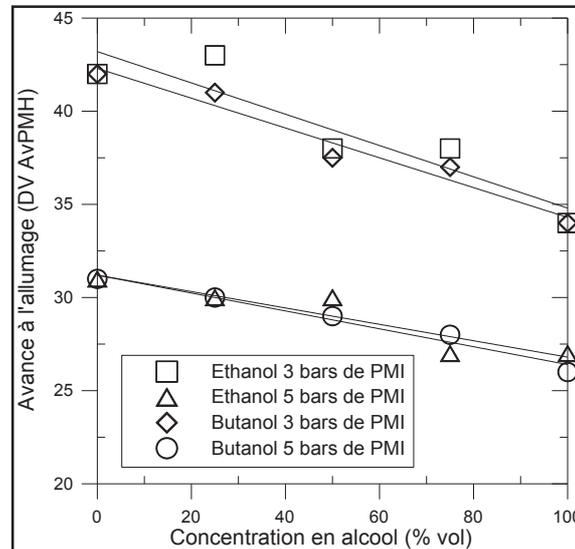


Figure 5-1: Avance à l'allumage en fonction de la concentration en alcool

Pour l'ensemble des mélanges étudiés, à une PMI identique, le rendement du moteur ( $\eta$ ) et l'énergie chimique injectée par cycle ( $E_{carb}$ ) ont été calculés à partir des équations (5.1) et (5.2). Pour tous les mélanges, la même énergie moyenne par cycle ( $E_{carb}$ ) et le même rendement moyen ( $\eta$ ) ont été trouvés pour un même point de fonctionnement (Tableau 5-2).

$$\eta(\%) = 100 \cdot \frac{\text{Puissance moteur (W)}}{PCI \left( \frac{J}{kg} \right) \cdot D_{carb} \left( \frac{kg}{s} \right)} \quad (5.1)$$

$$E_{carb} \left( \frac{J}{cycle} \right) = 2 \cdot \frac{D_{carb} \left( \frac{kg}{s} \right)}{\text{Rotation moteur} \left( \frac{rotation}{s} \right)} \cdot PCI \left( \frac{J}{kg} \right) \quad (5.2)$$

Avec  $\eta$  le rendement moyen, PCI le pouvoir calorifique inférieur,  $D_{carb}$  le débit de carburant et  $E_{carb}$  l'énergie moyenne par cycle.

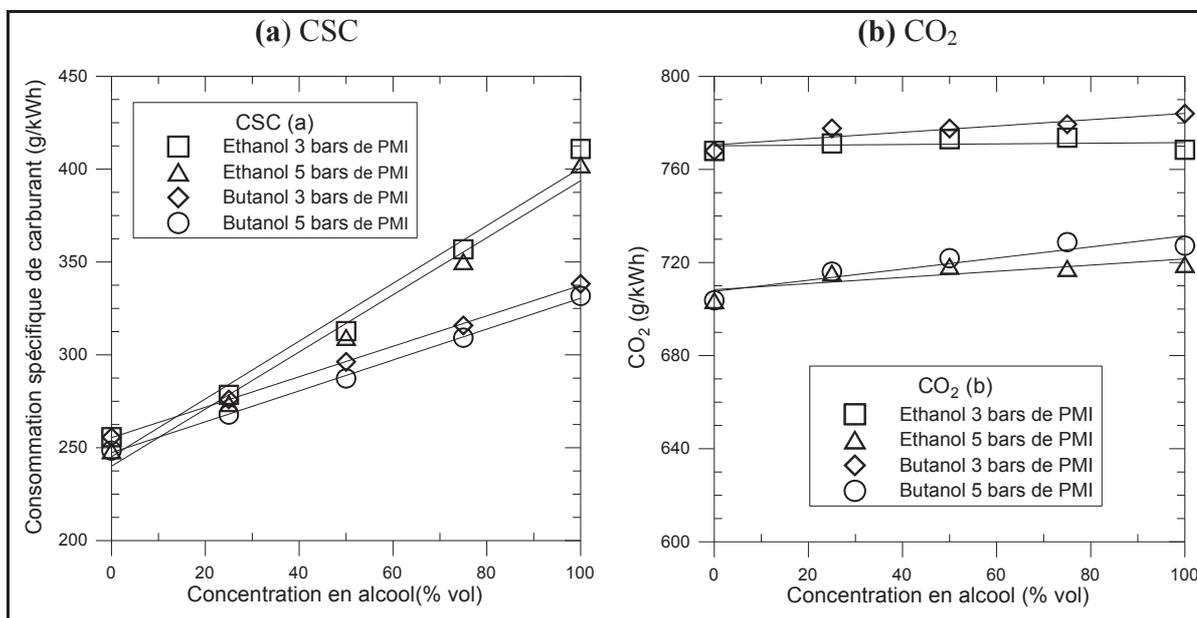


Figure 5-2: Consommation spécifique de carburant (a) et émissions de CO<sub>2</sub> (b) en fonction de la concentration en alcool pour les mélanges à l'éthanol et au butanol sur les deux points de fonctionnement

Sur la Figure 5-2 (a), la consommation spécifique de carburant (CSC) est tracée en fonction de la concentration en alcool dans l'isooctane: une augmentation avec l'ajout d'alcool est observée, plus prononcée pour l'éthanol à cause de son pouvoir calorifique inférieur (PCI) plus faible. Cependant, comme l'énergie chimique injectée par cycle est la même pour tous les mélanges, l'augmentation de la consommation spécifique de carburant contrebalance la baisse de PCI des alcools. Cette augmentation de la consommation spécifique de carburant induit un très léger accroissement des émissions de CO<sub>2</sub> d'environ 2-3 %, comme on peut le voir sur la Figure 5-2 (b). Il peut être considéré que la différence dans la masse de carburant injectée pour chaque mélange est compensée par le nombre de carbones présents dans la molécule de carburant et par la masse molaire du carburant, ce qui explique les différences observées dans les émissions de CO<sub>2</sub> entre chaque mélange.

Tableau 5-3 : Richesse limite acceptable de fonctionnement en fonction de la concentration d'alcool pour les mélanges isooctane/éthanol et isooctane/butanol

| <i>Quantité d'alcool</i> | <b>Éthanol</b> | <b>Butanol</b> |
|--------------------------|----------------|----------------|
| <b>0%</b>                | 0.71           | 0.71           |
| <b>50%</b>               | 0.689          | 0.689          |
| <b>100%</b>              | 0.645          | 0.675          |

Afin de mieux évaluer le potentiel du butanol, en particulier dans le cas d'une combustion pauvre en carburant, une étude spécifique a été réalisée, afin de déterminer la Limite en mélange Pauvre du Fonctionnement du moteur (LOL : Lean Operating Limit). La définition de cette limite est basée sur le critère d'une covariance de la PMI inférieure à 5 %, niveau acceptable pour les moteurs à allumage commandé classiques. La LOL a été étudiée pour des mélanges d'alcool à 0, 50 et 100 % sur le point à 2000 tr/min. Les résultats sont présentés dans le Tableau 5-3 et indiquent que les deux alcools permettent d'avoir une richesse limite plus basse que celle de l'isooctane, en particulier l'éthanol. Ceci peut être un avantage dans le cas d'un fonctionnement en mode pauvre (ex : le mode stratifié en Injection Directe Essence), car le moteur sera plus stable avec ces carburants, surtout avec l'éthanol. Avec les mélanges E50 et B50, une diminution de la richesse limite est déjà observée vis-à-vis de l'isooctane, mais il n'y a aucune différence entre les deux. Donc une amélioration de la stabilité du moteur peut être déjà obtenue avec ces deux mélanges, mais l'utilisation du butanol ou de l'éthanol ne changera rien.

Cette tendance sur la limite en mélange pauvre du fonctionnement du moteur avec l'ajout d'alcool confirme les résultats entrevus sur les écart-types des  $\theta$  et CAXX dans le chapitre 4.

## 5.6 Impact sur les Polluants réglementés

Nous avons choisi de comparer systématiquement nos résultats expérimentaux avec les seuls disponibles dans la littérature, ceux obtenus par Wallner et Frazee (2010k). Leurs essais ont été réalisés sur un moteur 4 cylindres (2.2 L) à allumage commandé et injection directe, avec des mélanges essence/éthanol (0, 10 et 50 % en volume) et essence/butanol (0, 15 et 83 % en

volume). Leurs points de fonctionnement étaient similaires aux nôtres: Point 1, 6 bars de PME et 2000 tr/min et Point 2, 2.62 bars de PME et 1500 tr/min.

Pour valider les tendances observées pour les émissions de polluants non-réglementés et de HC totaux, et pour donner des explications cinétiques, des simulations numériques ont été réalisées avec le code PSR (Perfectly Stirred Reactor) de Chemkin (1989a). Pour ce faire, le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces, utilisé précédemment, a été utilisé de nouveau. La pression initiale a été fixée à 1.0 MPa avec un temps de passage de 1s et ceci pour différentes températures initiales (700-1300 K), afin de considérer seulement les effets de la température initiale sur les réactions. Les simulations ont été réalisées pour les carburants purs seulement (isooctane, éthanol et butanol) pour des conditions stœchiométriques avec une forte dilution (fraction molaire de N<sub>2</sub> entre 96.8% et 97.3%). La dilution a été ajustée pour avoir la même énergie chimique initiale entre tous les carburants, comme pour les essais expérimentaux dans le moteur opaque (Tableau 5-2). La composition des mélanges réactants est donnée dans le Tableau 5-4.

Tableau 5-4: Compositions initiales des mélanges utilisées dans les simulations PSR avec les carburants purs

| <b>Carburant</b> | <b>Carburant<br/>(fraction molaire)</b> | <b>O<sub>2</sub><br/>(fraction molaire)</b> | <b>N<sub>2</sub><br/>(fraction molaire)</b> |
|------------------|---|---|---|
| <b>Isooctane</b> | 0.002                                   | 0.025                                       | 0.973                                       |
| <b>Butanol</b>   | 0.004                                   | 0.025                                       | 0.971                                       |
| <b>Éthanol</b>   | 0.008                                   | 0.024                                       | 0.968                                       |

Les émissions de HC Totaux non-correctés, incluant les émissions de CH<sub>4</sub>, en fonction de la concentration d'alcool sont présentées sur la Figure 5-3 pour nos deux points de fonctionnement à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b). La tendance globale est une diminution des émissions de HC Totaux de 40% maximum avec l'ajout d'alcool, tendance similaire obtenue par Wallner et Frazee (2010k), malgré une préparation du mélange très différente (due à l'injection directe). Varde *et al.* (2007i) ont aussi trouvé une baisse

constante des émissions de HC Totaux pour des essais avec ajout d'éthanol. La principale explication de cette diminution est que l'atome d'oxygène, présent dans la molécule d'alcool favorise le processus d'oxydation du CO en CO<sub>2</sub>, ce qui est cohérent avec la légère augmentation des émissions de CO<sub>2</sub> observée précédemment (Figure 5-2 (b)). De plus, il a été vu précédemment (chapitre 4) que la stabilité de la combustion est grandement améliorée avec l'ajout d'alcool, ce qui renforce la tendance observée sur les émissions de HC Totaux.

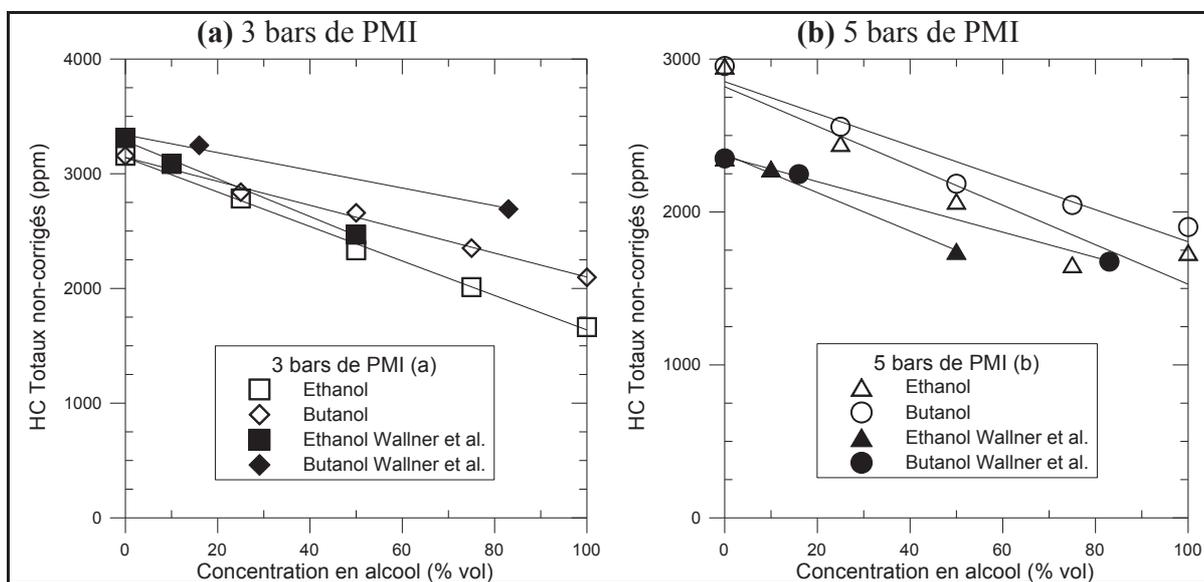


Figure 5-3: Émissions de HC totaux non-corrigés à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool

Cependant, ces résultats doivent être corrigés par un facteur correctif (FC) pour prendre en compte l'utilisation des alcools, ainsi que leurs concentrations dans l'isooctane pour ne pas sous-estimer les émissions de HC totaux. Wallner (2011r) propose une corrélation pour FC, qui dépend du pourcentage volumique ( $V_{Alc}$ ) et du nombre de carbone ( $n_C$ ) de l'alcool utilisé dans le mélange avec l'isooctane. Ce facteur correctif est défini comme suit :

$$FC = 0.9696 - 0.0001 \cdot V_{Alc} \cdot n_C - 3 \cdot 10^{-5} \cdot V_{Alc}^2 + 6 \cdot 10^{-5} \cdot n_C^2 + 7 \cdot 10^{-6} \cdot V_{Alc}^2 \cdot n_C + 2 \cdot 10^{-5} \cdot V_{Alc} \cdot n_C^2 \quad (5.3)$$

Les émissions de HC totaux corrigés sont tracées en fonction de la concentration d'alcool pour les deux points de fonctionnement sur la Figure 5-4. Avec l'ajout d'alcool, FC, inférieur

à 1, diminue. Donc, les émissions de HC totaux corrigés sont plus fortes que celles non-corrigés, excepté pour le E0/B0. Malgré cette correction, une diminution d'environ 30% des émissions de HC totaux est toujours observée avec l'ajout d'alcool, mais la différence entre les deux alcools est moins importante.

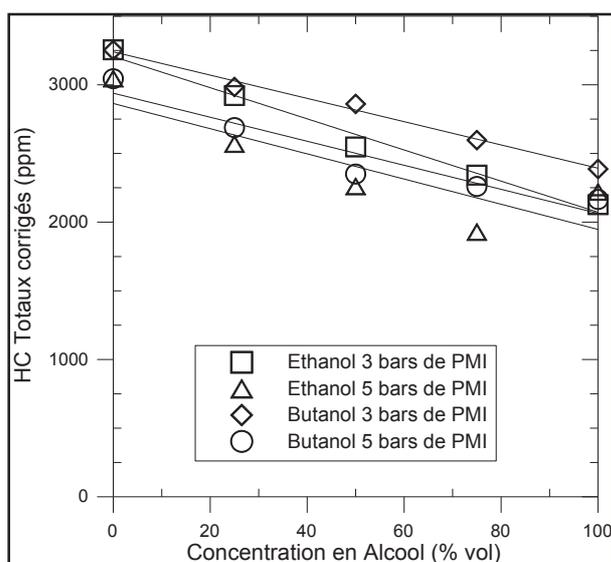


Figure 5-4: Émissions de HC totaux corrigés en fonction de la concentration en alcool pour les deux points de fonctionnement

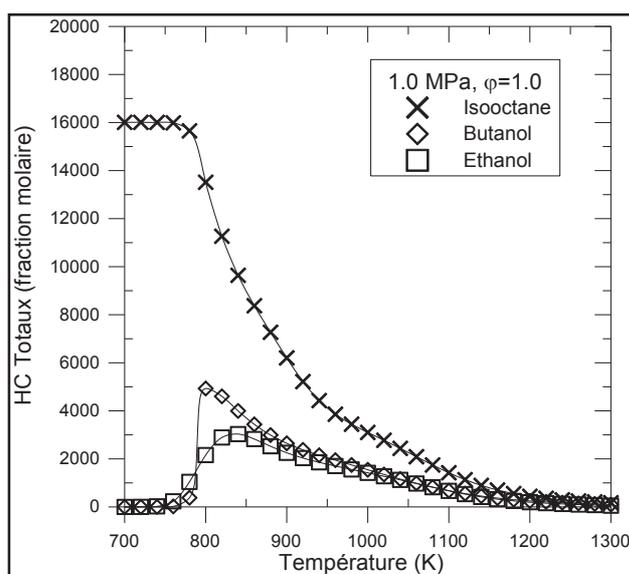


Figure 5-5: Concentrations de HC totaux issues des simulations PSR en fonction de la température

Sur la Figure 5-5, les concentrations de HC totaux obtenues des simulations PSR sont tracées en fonction de la température pour les trois carburants purs. Comme attendu, les concentrations de HC totaux diminuent avec l'augmentation de la température, à cause du procédé d'oxydation qui est amélioré. Il est évident que les concentrations sont plus fortes dans le cas de l'isooctane que des deux alcools, ce qui confirme les tendances observées pendant les essais expérimentaux sur le moteur.

Sur la Figure 5-6, on peut observer que les émissions de CO pour 3 bars de PMI (a) augmentent avec l'ajout des d'alcools et ce pour les deux alcools, mais diminuent à 5 bars de PMI (b). En fait, pour ces deux points de fonctionnement les richesses sont différentes : à 3 bars de PMI, la richesse est de 0.8, tandis qu'à 5 bars de PMI, de 1. La majorité des études, qui ont réalisées des expériences pour des mélanges stœchiométriques, présentent des tendances similaires à celles observées sur la Figure 5-6 (b) à 5 bars de PMI. Wallner et Frazee (2010k) ont toutefois trouvé des effets différents à faibles charges pour l'éthanol et le butanol.

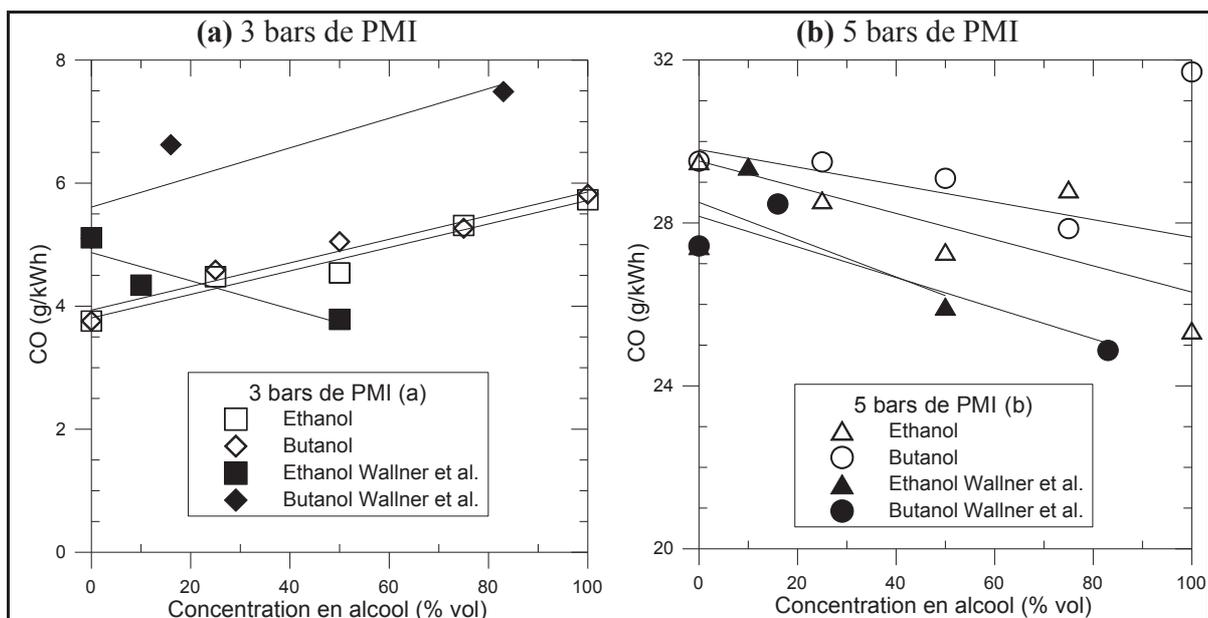


Figure 5-6: Émissions de CO 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool

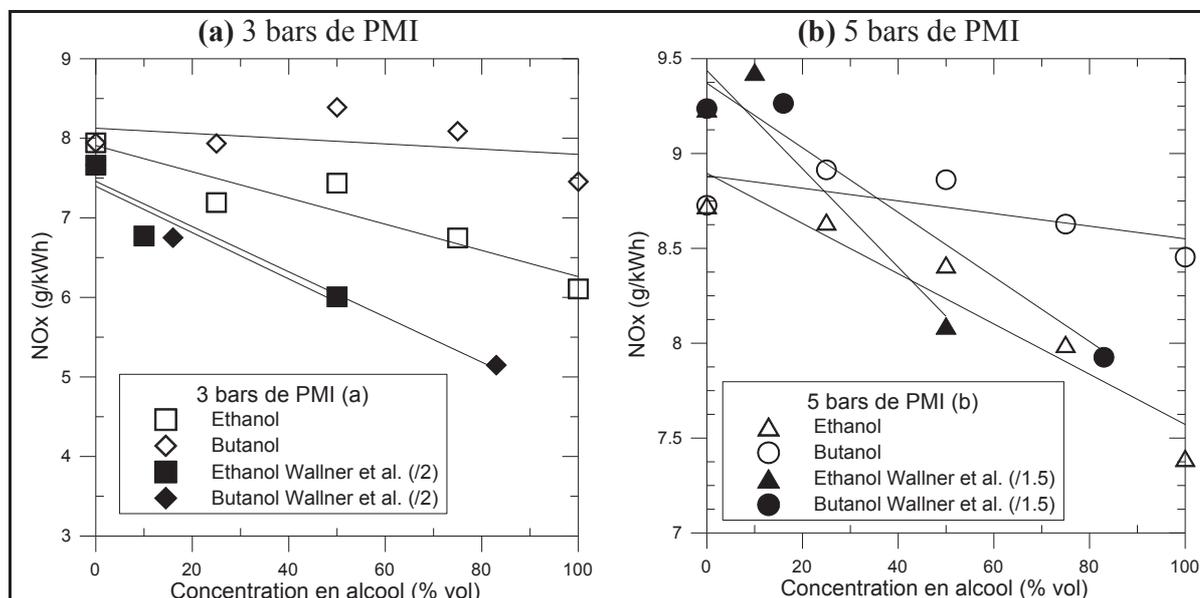


Figure 5-7: Émissions de NOx à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI en fonction de la concentration en alcool

Enfin, les émissions de NOx en fonction de la concentration d'alcool sont présentées sur la Figure 5-7 pour les points de fonctionnement à 3 bars (a) et 5 bars de PMI (b). Pour ces deux points de fonctionnement, une légère baisse est observée avec l'addition d'alcool, avec un impact plus conséquent dans le cas de l'éthanol. Ces résultats sont relativement en bon accord avec ceux observés par Wallner et Frazee (2010k). Varde *et al.* (2007i) ont aussi trouvé une baisse constante des émissions de NOx sur la plage de PME allant de 1 à 4 bars avec l'ajout d'éthanol. Jeuland *et al.* (2004d) ont commenté qu'à faible charge, la diminution des émissions de NOx avec l'ajout d'éthanol peut être expliqué par une combustion plus rapide, d'où un temps de résidence plus court.

Cependant, la baisse des émissions de NOx peut aussi s'expliquer par une augmentation de la chaleur spécifique à pression constante des gaz brûlés,  $C_{p,b}$ , avec les deux alcools par rapport à l'isooctane, en particulier pour l'éthanol. Ceci se vérifie sur la Figure 5-8, qui présente l'évolution de la chaleur spécifique à pression constante des gaz brûlés  $C_{p,b}$  (calculées à partir des données du site NIST (2011b)) en fonction de la température initiale à 1.0 MPa respectivement pour des richesses de 0.8 (a) et 1 (b). Ces conditions ont été choisies afin de représenter au mieux les conditions thermodynamiques dans un moteur à allumage

commandé au moment de l'allumage. Pour calculer les nombres de mole de produits pour chaque carburant pour chaque pression, ainsi que les températures adiabatiques de flamme nécessaire dans le calcul de  $C_{p,b}$ , le programme EQUIL de Chemkin (Kee *et al.* (1989a)) a été utilisé avec le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces. En effet, le fait d'avoir une chaleur spécifique à pression constante des gaz brûlés plus forte va permettre de diminuer la température dans le cylindre et donc de diminuer les émissions de NOx. Cependant, la différence entre les chaleurs spécifiques à pression constante des gaz brûlés des carburants est relativement faible, donc l'impact sur la baisse des émissions de NOx va être faible aussi. L'impact du temps de résidence va être clairement prépondérant ici dans la diminution des émissions de NOx avec l'ajout d'alcool.

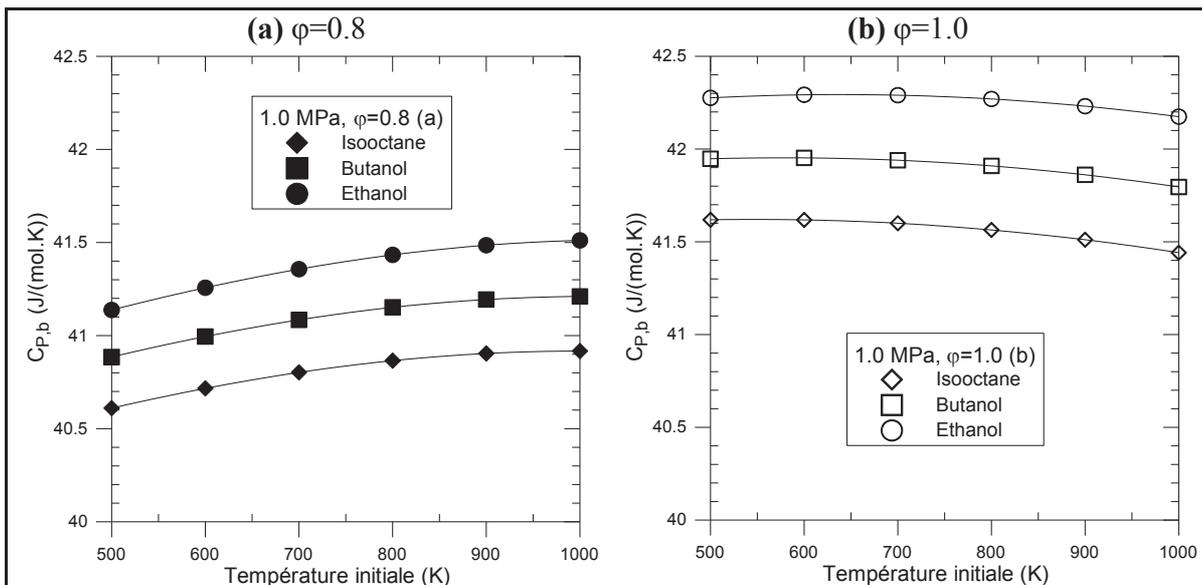


Figure 5-8: Évolution de la chaleur spécifique à pression constante des gaz brûlés  $C_{p,b}$  en fonction de la température initiale du mélange air/carburant pour les trois carburants purs à 1.0 MPa pour  $\phi=0.8$  (a) et  $\phi=1.0$  (b)

## 5.7 Impact sur les Polluants non-réglés

Les émissions de polluants non-réglés sont présentés ici, en analysant les chemins préférentiels de formation de ces polluants via leurs précurseurs, à partir des résultats issus des études de Dagaut et Togbé (2008d) sur l'oxydation du butanol, de Leplat *et al.* (2010g) sur l'oxydation de l'éthanol, de Jia et Xie (2006e) et Curran *et al.* (2002a) sur l'oxydation de

l'isooctane et enfin, les travaux de Zhang *et al.* (2009m) sur les principaux chemins de formation du benzène.

Sur la Figure 5-9, les émissions de  $C_2H_4$  sont tracées en fonction de la concentration d'alcool. Les tendances observées montrent une très forte augmentation avec l'ajout de butanol, alors qu'une baisse est observée avec l'addition d'éthanol, jusqu'à un niveau inférieur à la limite de détection de l'analyseur (<20 ppm) pour cette espèce pour 75 et 100 %<sub>vol</sub> d'éthanol à la PMI de 3 bars. Les résultats issus des simulations PSR (Figure 5-10) confirment que même si la production de  $C_2H_4$  est plus forte pour les deux alcools qu'avec l'isooctane, la concentration pour l'éthanol diminue plus rapidement que pour le butanol avec l'augmentation de la température initiale. Donc, il est cohérent de voir dans le moteur que le  $C_2H_4$  peut être produit en plus grande quantité avec le butanol qu'avec l'éthanol.

L'analyse des chemins préférentiels (Dagaut et Togbé (2008d) et Leplat *et al.* (2010g)) indique que le  $C_2H_4$  est un précurseur d'autres espèces comme le  $CH_4$  via  $CH_3$ ,  $C_2H_2$  via  $C_2H_3$  et  $CH_2O$  ce qui laisse présager pour ces polluants des tendances similaires au  $C_2H_4$ .

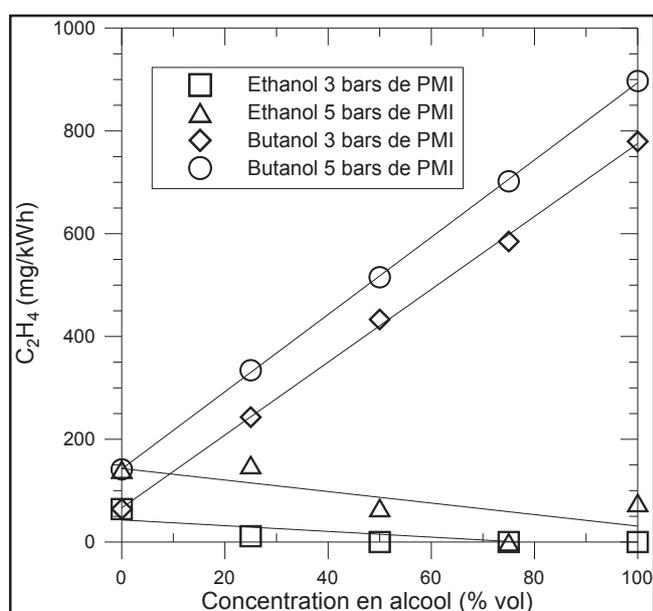


Figure 5-9: Émissions de  $C_2H_4$  en fonction de la concentration en alcool

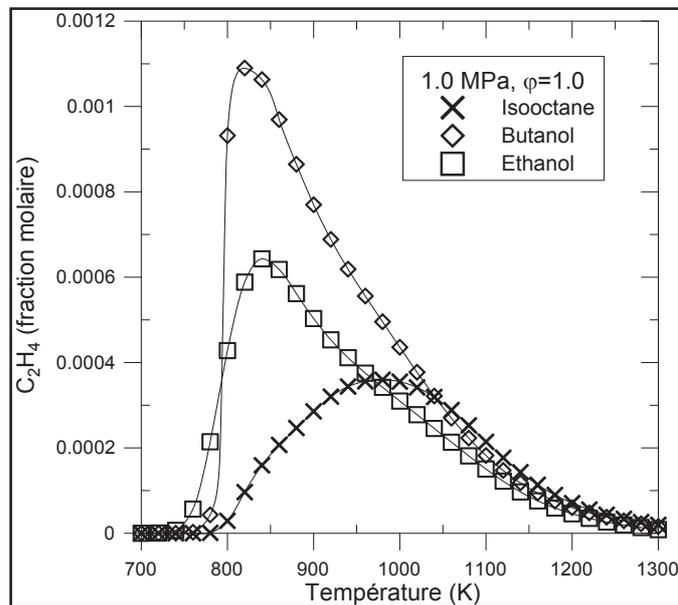


Figure 5-10: Concentrations de  $C_2H_4$  issues des simulations PSR en fonction de la température

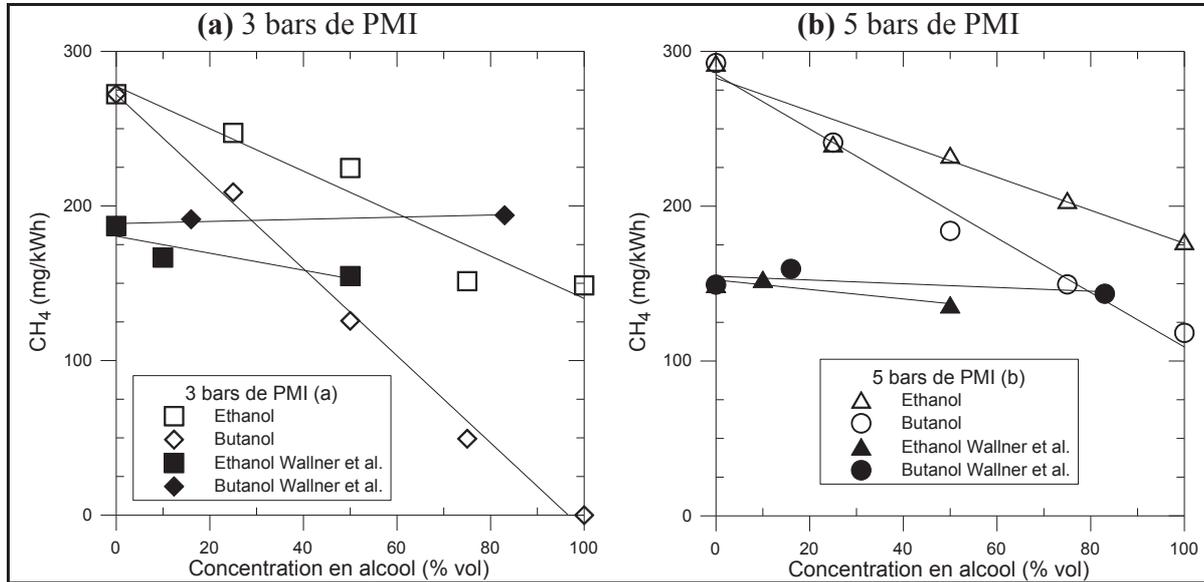


Figure 5-11: Émissions de  $CH_4$  à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool

Les émissions de  $CH_4$  sont tracées en fonction de la concentration d'alcool à 3 bars (a) et 5 bars de PMI (b) sur la Figure 5-11. Une diminution jusqu'à -45% avec l'ajout d'éthanol est notée. Mais, une baisse plus importante avec le butanol qu'avec l'éthanol est observée,

particulièrement à 3 bars de PMI où le  $\text{CH}_4$  ne peut pas être détecté par l'analyseur pour le B100. Ces tendances sont en contradiction avec les résultats de Wallner et Frazee (2010k), aussi présentés sur la Figure 5-11, qui montrent une légère baisse des émissions de  $\text{CH}_4$  à 3 bars de PMI et des émissions constantes à 5 bars de PMI avec l'ajout de butanol et une très faible diminution des émissions de  $\text{CH}_4$  avec l'ajout d'éthanol. Même si la production de  $\text{CH}_4$  dans le cas de l'éthanol est plus grande que celle de l'isooctane et du butanol (Figure 5-12), les simulations PSR confirment qu'après 1000 K, la concentration de  $\text{CH}_4$  diminue pour l'éthanol et devient plus faible que celle de l'isooctane. Ceci permet de retrouver les tendances aperçues dans le moteur.

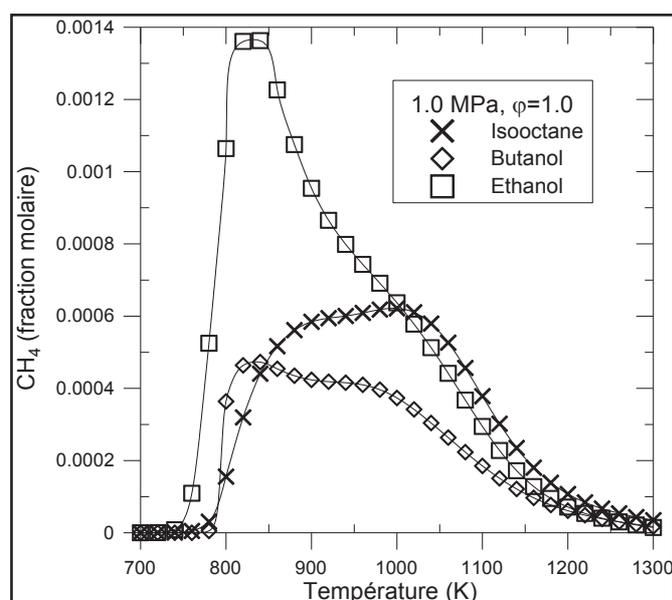


Figure 5-12: Concentrations de  $\text{CH}_4$  issues des simulations PSR en fonction de la température

Afin d'expliquer la baisse des émissions de  $\text{CH}_4$  avec l'ajout d'alcool, l'analyse des chemins préférentiels utilisant les schémas cinétiques d'oxydation appropriés montre, que les principaux précurseurs à la formation du  $\text{CH}_4$  sont le  $\text{CH}_3$  et le  $\text{C}_8\text{H}_{18}$ , dans le cas des schémas cinétiques d'oxydation de l'isooctane (Curran *et al.* (2002a); Jia et Xie (2006e)). Au début de la réaction, le  $\text{C}_8\text{H}_{18}$  est principalement décomposé en deux molécules :  $\text{C}_4\text{H}_9$  et  $\text{C}_8\text{H}_{17}$  et de ce dernier le  $\text{CH}_4$  est créé. La deuxième voie de formation du  $\text{CH}_4$  est à partir du

$\text{CH}_3$  qui provient lui-même de la fragmentation de chaînes d'hydrocarbures plus longues. Donc, le fait d'ajouter de l'alcool dans l'isooctane contribue à diminuer la quantité d'isooctane dans le carburant, et donc à réduire la formation du  $\text{CH}_4$  via le  $\text{C}_8\text{H}_{18}$ . De plus, d'après les schémas cinétiques d'oxydation du butanol (Dagaut et Togbé (2008d)) et de l'éthanol (Leplat *et al.* (2010g)), il a été observé qu'avec les alcools, le  $\text{CH}_3$  produisait du  $\text{CH}_3\text{O}$ , qui est un précurseur du  $\text{CH}_2\text{O}$ , au lieu du  $\text{CH}_4$ . Pour conclure, l'addition d'alcools peut limiter les principaux chemins préférentiels produisant le méthane.

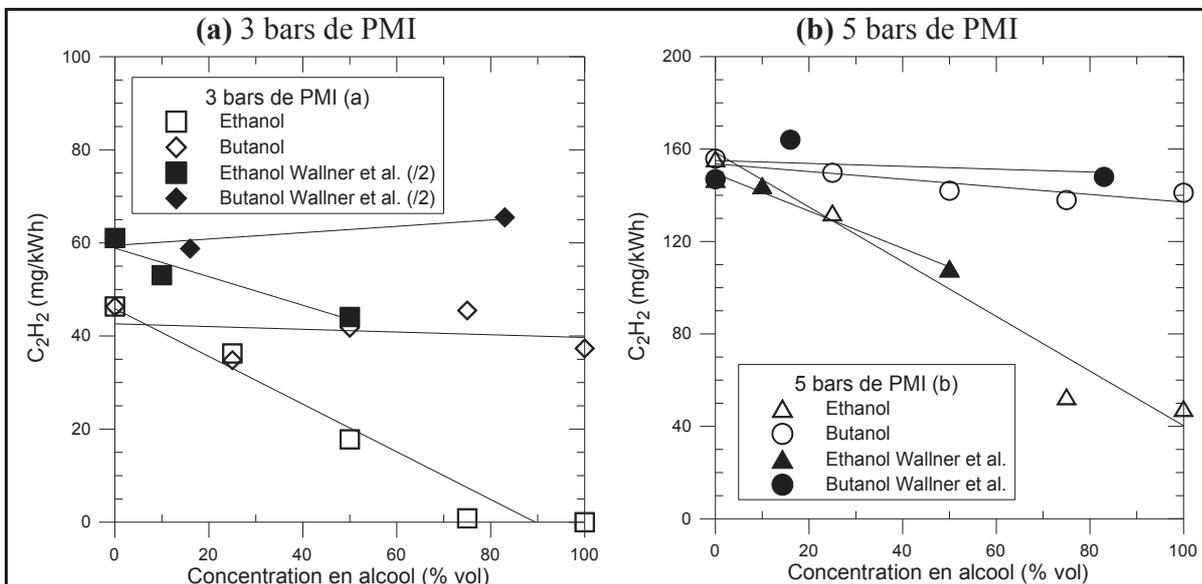


Figure 5-13: Émissions de  $\text{C}_2\text{H}_2$  à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool

Sur la Figure 5-13, les émissions de  $\text{C}_2\text{H}_2$  sont tracées en fonction de la concentration d'alcool à 3 bars (a) et 5 bars de PMI (b). Celles-ci sont réduites avec l'ajout d'éthanol, alors que les émissions restent relativement constantes avec le butanol, comme l'observent aussi Wallner et Frazee (2010k). L'absence d'émissions de  $\text{C}_2\text{H}_2$  pour 75 et 100 % d'éthanol (précision de l'analyseur < 10 ppm) à 3 bars de PMI est cohérente avec l'absence de  $\text{C}_2\text{H}_4$  (Figure 5-9). En effet, le  $\text{C}_2\text{H}_4$  génère principalement, via du  $\text{C}_2\text{H}_3$ , du  $\text{C}_2\text{H}_2$  (Dagaut et Togbé (2008d); Leplat *et al.* (2010g)), qui est un précurseur de suies et de benzène comme l'expliquent Zhang *et al.* (2009m). Cependant, avec l'ajout de butanol, les émissions de  $\text{C}_2\text{H}_4$  augmentent, alors que celles de  $\text{C}_2\text{H}_2$  restent constantes. Ceci est peut-être dû au fait qu'avec

la présence de butanol, le chemin préférentiel du  $C_2H_4$  produirait d'avantage de  $C_2H_3$ , qui est pour le butanol un précurseur de  $CH_2O$ , comme le signalent Dagaut et Togbé (2008d).

Pour confirmer cela, les simulations PSR peuvent être observées sur la Figure 5-14 : les concentrations de  $C_2H_2$  sont plus fortes avec l'isooctane que pour les deux alcools. L'évolution en fonction de la température est opposée à celle des concentrations de  $C_2H_4$  (Figure 5-10) avec différentes concentrations maximales entre les deux espèces (celles de  $C_2H_4$  étant supérieures à celles de  $C_2H_2$ ). Donc, le  $C_2H_4$  est majoritairement oxydé, à haute température, en  $C_2H_3$ , et en plus faible importance en  $CH_3$ . Puis le  $C_2H_3$  donne principalement du  $C_2H_2$ , comme évoqué précédemment. De plus, pour l'éthanol, la concentration de  $C_2H_4$  était faible, provoquant une plus faible concentration de  $C_2H_2$ , comme observé dans les émissions polluantes du moteur. Pour le butanol, le comportement observé est à l'opposé de l'éthanol avec de fortes concentrations de  $C_2H_4$  et des émissions de  $C_2H_2$  constantes. Donc le  $C_2H_4$  s'oxyde en  $C_2H_3$ , mais derrière peu de  $C_2H_3$  va s'oxyder en  $C_2H_2$ , privilégiant plutôt le chemin préférentiel menant au  $CH_2O$ . A l'inverse, pour l'isooctane, le chemin préférentiel via le  $C_2H_3$  pour produire du  $CH_2O$  n'est pas si important, puisque une forte partie des faibles concentrations de  $C_2H_4$  donne les grandes concentrations de  $C_2H_2$ . Ceci confirme donc que l'ajout d'alcool, en particulier d'éthanol, permet d'éviter la formation de  $C_2H_2$ , de benzène et de précurseurs de suies : soit en émettant moins de  $C_2H_4$  à l'origine comme avec l'éthanol, soit en passant par un autre chemin d'oxydation du  $C_2H_3$ , qui va certainement produire plus de  $CH_3$ , puis de  $CH_2O$  dans le cas du butanol.

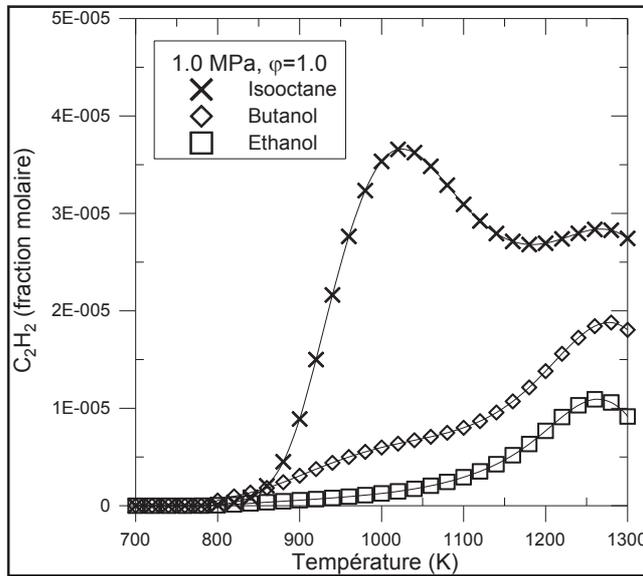


Figure 5-14: Concentrations de  $C_2H_2$  issues des simulations PSR en fonction de la température

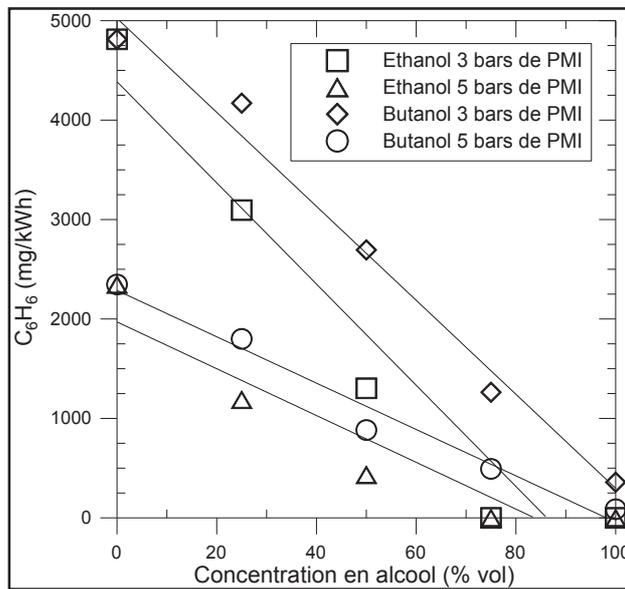


Figure 5-15: Émissions de  $C_6H_6$  en fonction de la concentration en alcool pour les mélanges à l'éthanol et au butanol sur les deux points de fonctionnement

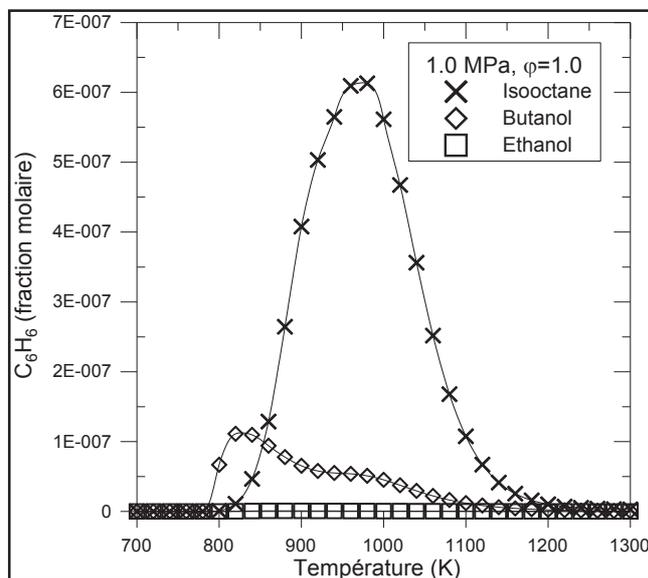


Figure 5-16: Concentrations de  $C_6H_6$  issues des simulations PSR en fonction de la température

En ce qui concerne les émissions de  $C_6H_6$ , on peut observer sur la Figure 5-15, une forte baisse avec l'ajout d'alcool, en particulier dans le cas des mélanges à l'éthanol, où les émissions de  $C_6H_6$  ne sont plus détectables par l'analyseur pour 75 et 100% d'éthanol. Selon Zhang *et al.* (2009m), les précurseurs du  $C_6H_6$  sont le 1,3- $C_4H_6$  (1,3-Butadiène), le  $C_3H_3$  et le  $C_2H_2$ . Comme les émissions de  $C_2H_2$  diminuent avec l'ajout d'éthanol, il est cohérent d'avoir la même tendance pour les émissions de  $C_6H_6$ . Cependant, malgré des émissions de  $C_2H_2$  constantes, l'addition de butanol entraîne également une forte diminution des émissions de  $C_6H_6$ . Donc pour le butanol, on peut supposer que le  $C_2H_2$  est un précurseur moins important que le 1,3- $C_4H_6$  et le  $C_3H_3$  dans la formation du  $C_6H_6$ . De plus, on peut émettre l'hypothèse que les deux autres précurseurs soient fortement réduits avec l'ajout de butanol, ce qui entraînerait cette baisse des émissions de  $C_6H_6$ . Ceci est confirmé avec les résultats issus des simulations PSR sur la Figure 5-16, où les concentrations de  $C_6H_6$  sont tracées en fonction de la température pour les trois carburants purs. Comme les concentrations de  $C_2H_2$  sont plus faibles pour les alcools que pour l'isooctane, il est logique de trouver les mêmes tendances pour les concentrations de  $C_6H_6$ . Cependant, comme les concentrations de  $C_6H_6$  sont plus faibles que celles de  $C_2H_2$  (Figure 5-14) pour les trois carburants purs, il existe une forte

probabilité que le  $C_2H_2$  suive un autre chemin réactionnel pour s'oxyder que celui menant au  $C_6H_6$ .

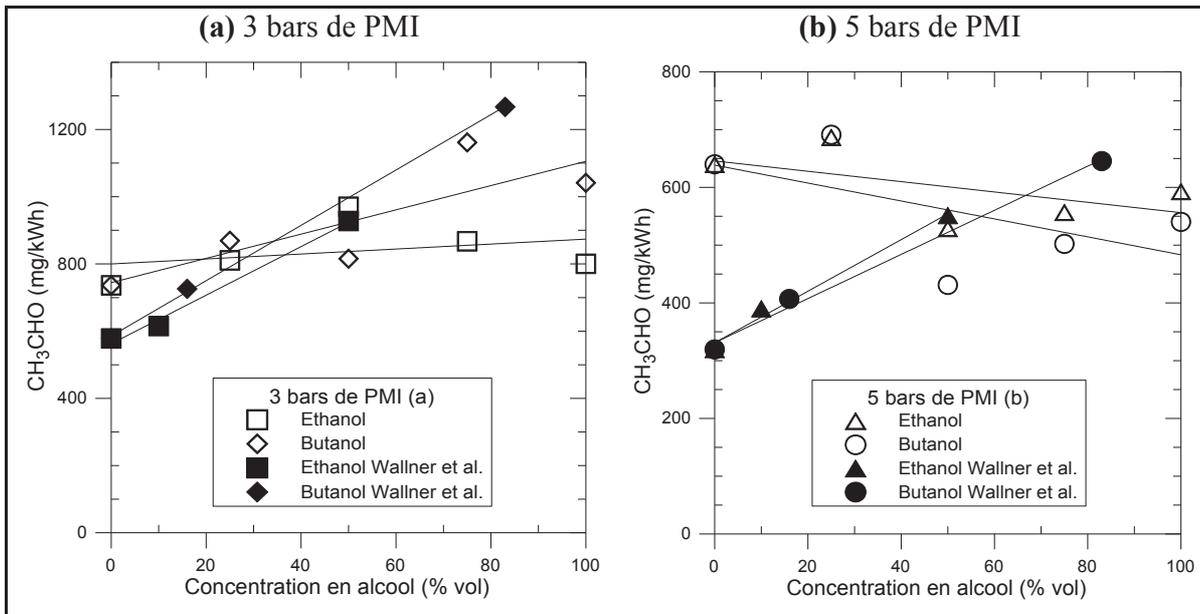


Figure 5-17: Émissions de  $CH_3CHO$  3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool

Sur la Figure 5-17, les émissions de  $CH_3CHO$  sont tracées en fonction de la concentration en alcool à 3 bars (a) et 5 bars de PMI (b). Les émissions de  $CH_3CHO$  présentent des tendances différentes selon la charge du moteur. A 3 bars de PMI, une augmentation de ces émissions pour les deux alcools est observée, en accord avec les résultats de Wallner et Frazee (2010k). Cependant à 5 bars de PMI, une légère diminution des émissions de  $CH_3CHO$  est observée avec l'addition d'alcool. Par conséquent, une baisse des émissions de  $CH_3CHO$  est remarquée avec l'augmentation de la charge, en particulier avec l'ajout d'alcool. Varde *et al.* (2007i) observent aussi une augmentation des émissions de  $CH_3CHO$  avec l'ajout d'éthanol, mais plus la charge est forte, plus l'écart entre le E85 et l'essence sur ces émissions est faible. Cette tendance peut être expliquée par le fait que plus la charge est importante, plus la température dans le cylindre est importante, or  $CH_3CHO$  est formé à basse température (Dagaut et Togbé (2008d); Leplat *et al.* (2010g)). Selon Dagaut *et al.* (2009c),  $CH_3CHO$  est formé à partir du butanol via une  $\beta$ -scission du  $nC_4H_9OH$ . En prenant en compte les résultats

de Leplat *et al.* (2010g) concernant l'éthanol, le  $\text{CH}_3\text{CHO}$  est principalement formé via le  $\text{CH}_3\text{CHOH}$ . Enfin, on remarque un chemin préférentiel commun entre les deux alcools pour la destruction du  $\text{CH}_3\text{CHO}$ , qui amène à la création de  $\text{CH}_2\text{O}$  (Dagaut et Togbé (2008d); Leplat *et al.* (2010g)).

Des résultats issus des simulations PSR (Figure 5-18), il a été remarqué que les concentrations de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  étaient plus fortes pour les deux alcools, mais avec des valeurs faibles à haute température à cause de l'oxydation. Comme les concentrations de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  sont plus fortes pour l'éthanol que pour le butanol, il devrait être logique de trouver des émissions de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  plus fortes avec l'éthanol qu'avec le butanol en sortie du moteur. Donc, on peut supposer que le  $\text{CH}_3\text{CHO}$  est mieux oxydé, probablement en  $\text{CH}_2\text{O}$  dans le cas de l'éthanol, que dans celui du butanol.

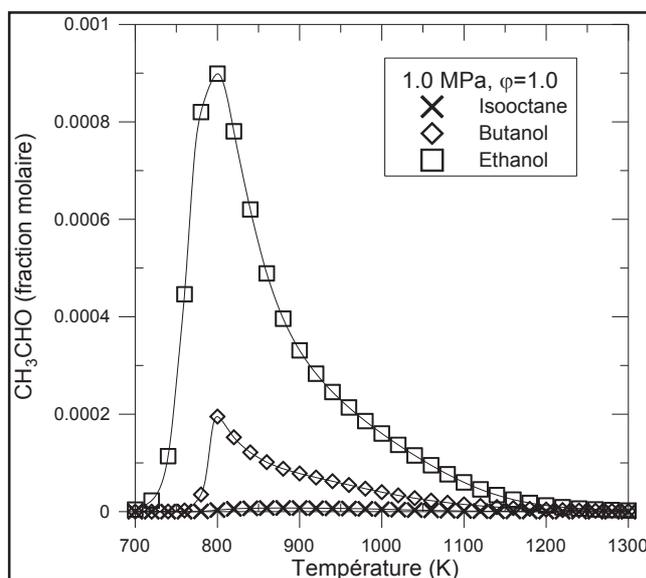


Figure 5-18: Concentrations de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  issues des simulations PSR en fonction de la température

Sur la Figure 5-19, on peut noter que les émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$  augmentent avec l'ajout de butanol, alors qu'elles restent constantes avec l'addition d'éthanol, et ce, pour les deux points de fonctionnement. Ces tendances sont confirmées par les résultats obtenus par Wallner et Frazee (2010k). De plus, plus la charge est faible, plus les émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$  sont

importantes. Cette tendance peut s'expliquer par le fait que le  $\text{CH}_2\text{O}$  est formé à basse température (Griffiths et Barnard (1995b)).

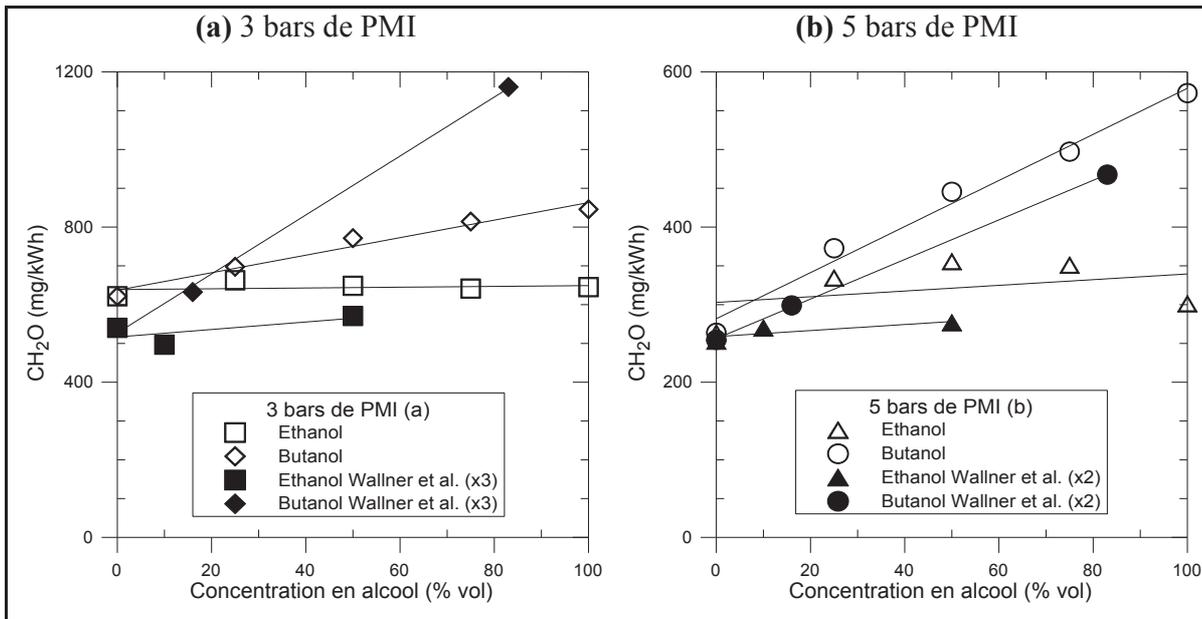


Figure 5-19: Émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$  à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration en alcool

Selon les résultats de Dagaut et Togbé (2008d) et Leplat *et al.* (2010g), le  $\text{CH}_3\text{CHO}$  est oxydé successivement en  $\text{CH}_3\text{CO}$ ,  $\text{CH}_3$  et finalement en  $\text{CH}_2\text{O}$ , pour les deux alcools. A partir du  $\text{aC}_4\text{H}_8\text{OH}$  (pour le butanol), un autre chemin préférentiel crée le  $\text{CH}_2\text{O}$  via successivement  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_3$  et  $\text{CH}_2\text{OH}$ . Il y a trois autres chemins préférentiels pour former le  $\text{CH}_2\text{O}$ , à savoir via deux isomères de  $\text{aC}_4\text{H}_8\text{OH}$  (le  $\text{bC}_4\text{H}_8\text{OH}$  et le  $\text{cC}_4\text{H}_8\text{OH}$ ) et le  $\text{C}_4\text{H}_9\text{O}$ . A partir du  $\text{C}_2\text{H}_4$  via le  $\text{CH}_3$ , le  $\text{CH}_2\text{O}$  est aussi créé. Selon Curran *et al.* (2002a) et Jia *et al.* (2006e), le chemin préférentiel pour produire le  $\text{CH}_2\text{O}$  à partir de l'isooctane est totalement différent. 2 chemins principaux peuvent être utilisés, un à basse température pour donner du  $\text{C}_8\text{H}_{16}\text{OOH}$  et un autre pour obtenir directement du  $\text{C}_4\text{H}_8$  ou indirectement via  $\text{C}_8\text{H}_{16}$  ou  $\text{C}_4\text{H}_9$ . Pour produire le  $\text{C}_4\text{H}_8$  à partir du  $\text{C}_6\text{H}_{16}$  et du  $\text{C}_8\text{H}_{17}$ , le  $\text{CH}_3$  est aussi formé et va participer à la création du  $\text{CH}_4$ . Ensuite, à partir du  $\text{C}_8\text{H}_{16}\text{OOH}$ , le  $\text{CH}_2\text{O}$  est produit en faible quantité via la  $\beta$ -scission. Finalement, le  $\text{C}_4\text{H}_8$  donne du  $\text{C}_2\text{H}_3$  et du  $\text{C}_2\text{H}_4$ , qui sont des précurseurs du  $\text{CH}_2\text{O}$  pour les deux alcools. De plus, comme le chemin entre le  $\text{CH}_3\text{CHO}$  et

le  $\text{CH}_2\text{O}$  est similaire pour les deux alcools et comme l'isooctane produit le  $\text{CH}_3\text{CHO}$ , il est possible que le même chemin puisse être suivi dans le cas de l'oxydation de l'isooctane. Donc, pour l'isooctane, les deux principaux chemins pour produire du  $\text{CH}_2\text{O}$  sont via le  $\text{C}_4\text{H}_8$  (via  $\text{C}_2\text{H}_4$ ) et le  $\text{CH}_3\text{CHO}$ . Finalement,  $\text{CH}_2\text{O}$  est détruit, produisant du  $\text{HCO}$ , puis du  $\text{CO}$  et enfin du  $\text{CO}_2$ .

L'isooctane et l'éthanol ont donc les mêmes chemins pour produire le  $\text{CH}_2\text{O}$  à partir du  $\text{CH}_3\text{CHO}$  et du  $\text{C}_2\text{H}_4$ . A 3 bars de PMI, moins de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  est produit avec l'isooctane qu'avec l'éthanol (Figure 5-17 (a)), mais l'éthanol produit moins de  $\text{C}_2\text{H}_4$  (Figure 5-9). Donc, les deux chemins semblent avoir le même impact et produisent la même quantité de  $\text{CH}_2\text{O}$ , comme on l'a vu dans la Figure 5-19 (a). A 5 bars de PMI, l'éthanol produit moins de  $\text{C}_2\text{H}_4$  (Figure 5-9 (b)) et de  $\text{CH}_3\text{CHO}$  (Figure 5-17 (b)). Cependant, le  $\text{CH}_3\text{CHO}$  est détruit pour former du  $\text{CH}_3$  et une partie du  $\text{C}_2\text{H}_4$  devient aussi du  $\text{CH}_3$ . Comme on a pu le voir sur la Figure 5-11 (b), la production de  $\text{CH}_4$  à partir du  $\text{CH}_3$  est plus grande dans le cas de l'isooctane qu'avec l'éthanol, donc moins de  $\text{CH}_3$  est présent pour produire du  $\text{CH}_2\text{O}$  avec l'isooctane. D'où au final, des émissions relativement constantes de  $\text{CH}_2\text{O}$  entre l'isooctane et l'éthanol. D'un autre côté, le butanol produit plus de  $\text{C}_2\text{H}_4$  (Figure 5-9) et moins de  $\text{CH}_4$  (Figure 5-11) que l'isooctane et l'éthanol sur les deux points de fonctionnement, ce qui engendre de forts niveaux d'émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$ .

L'idée que, comme le  $\text{CH}_3$  est un des précurseurs commun au  $\text{CH}_4$  et au  $\text{CH}_2\text{O}$ , l'un des deux chemins préférentiels est favorisé selon la concentration d'alcool peut se vérifier sur la Figure 5-20. Elles présentent les émissions de  $\text{CH}_4$  et  $\text{CH}_2\text{O}$  adimensionnées par les valeurs pour l'isooctane en fonction de la concentration d'alcool à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b). En effet, sur les deux points de fonctionnement moteur, les émissions de  $\text{CH}_4$  et  $\text{CH}_2\text{O}$  sont opposés pour les deux alcools. De plus, l'impact est plus important pour le butanol, puisque la baisse des émissions de  $\text{CH}_4$  et l'augmentation des émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$  sont plus importantes que pour l'éthanol. Enfin, la baisse des émissions du  $\text{CH}_4$  est plus forte que l'augmentation du  $\text{CH}_2\text{O}$  pour les deux carburants et sur les deux points de fonctionnement moteur. Donc soit le  $\text{CH}_2\text{O}$  est en partie oxydé, ce qui générerait moins d'émissions, soit ses

précurseurs, comme le  $\text{CH}_3$ , emprunte une autre voie d'oxydation (autre que celle menant au  $\text{CH}_4$ ).

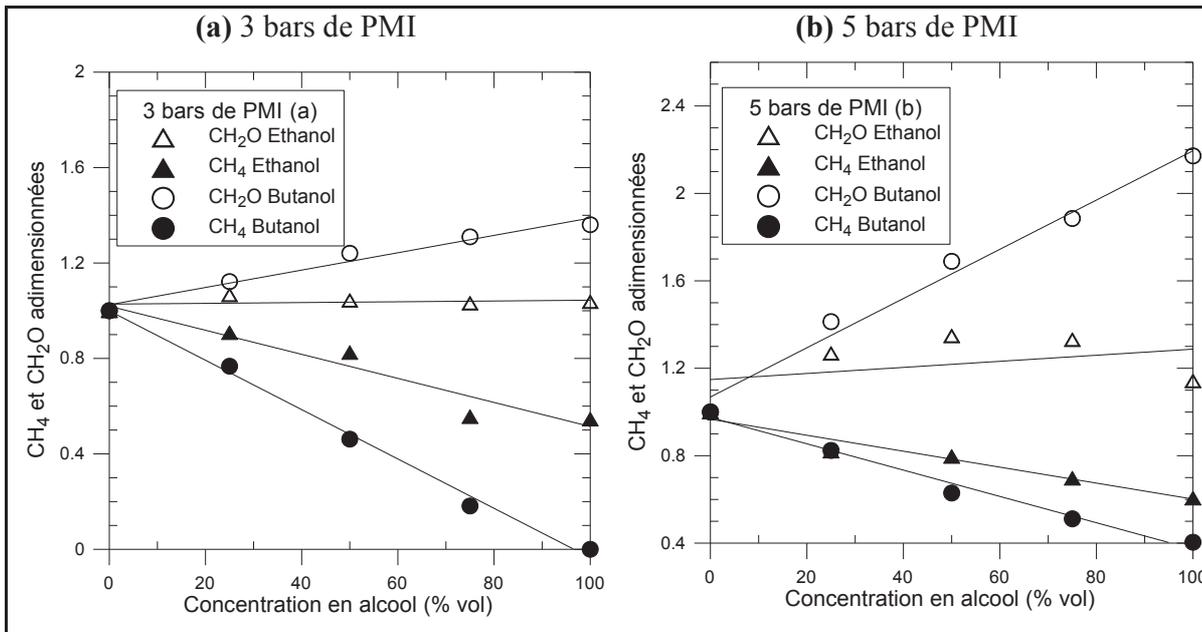


Figure 5-20: Émissions de  $\text{CH}_4$  et  $\text{CH}_2\text{O}$  adimensionnées par rapport à l'isooctane à 3 bars de PMI (a) et 5 bars de PMI (b) en fonction de la concentration d'alcool

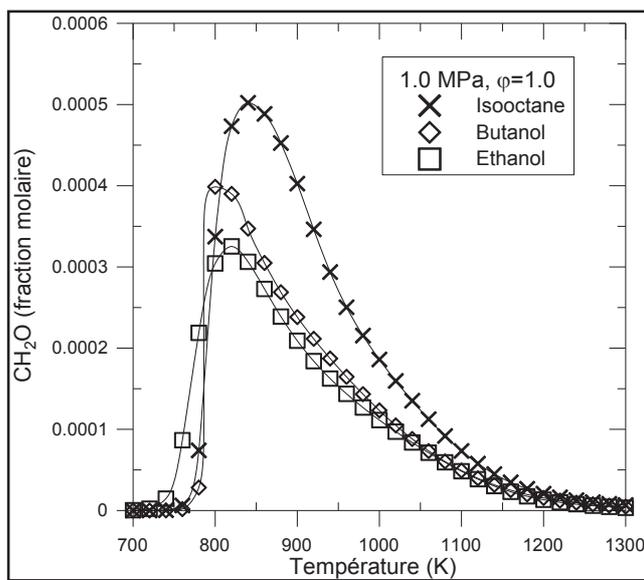


Figure 5-21: Concentrations de  $\text{CH}_2\text{O}$  issues des simulations PSR en fonction de la température

Les résultats issus des simulations PSR (Figure 5-21) montrent l'évolution des concentrations de  $\text{CH}_2\text{O}$  en fonction de la température pour les trois carburants purs. Les concentrations de  $\text{CH}_2\text{O}$  sont plus fortes pour l'isooctane, puis le butanol et enfin l'éthanol. A haute température, les concentrations de  $\text{CH}_2\text{O}$  diminuent avec l'oxydation. Le fait que le butanol ait de plus fortes concentrations de  $\text{CH}_2\text{O}$  que l'éthanol est cohérent avec les résultats des essais sur le moteur. Cependant, les maximums de concentration de  $\text{CH}_2\text{O}$  pour le butanol et l'isooctane sont plus forts que ceux du  $\text{CH}_3\text{CHO}$  (Figure 5-18), ce qui confirme qu'une part du  $\text{CH}_2\text{O}$  est produit à partir du  $\text{C}_2\text{H}_4$  dans le cas de l'isooctane et du butanol. Cependant, pour l'isooctane, le maximum de concentration de  $\text{C}_2\text{H}_4$  (Figure 5-10) est plus faible que le maximum de concentration de  $\text{CH}_2\text{O}$ , donc un autre chemin doit créer du  $\text{CH}_2\text{O}$ . Malgré de plus fortes concentration de  $\text{CH}_2\text{O}$  pour l'isooctane, le  $\text{CH}_2\text{O}$  doit être bien oxydé pour avoir des émissions similaires à celles de l'éthanol et plus faibles que celles du butanol. Pour l'éthanol, c'est le contraire, le maximum de concentration de  $\text{CH}_2\text{O}$  est plus faible que celui du  $\text{CH}_3\text{CHO}$ , donc une grande part du  $\text{CH}_3$ , venant du  $\text{CH}_3\text{CHO}$ , ne deviendra ni du  $\text{CH}_4$ , ni du  $\text{CH}_2\text{O}$ . Donc il y a un autre chemin qui détruit le  $\text{CH}_3\text{CHO}$ . De plus, les fortes concentrations de  $\text{C}_2\text{H}_4$  avec l'éthanol ne deviennent ni du  $\text{CH}_2\text{O}$ , ni du  $\text{C}_2\text{H}_2$ , donc comme les émissions de  $\text{C}_2\text{H}_4$  issues du moteur sont très faibles, il doit y avoir un autre chemin permettant de consommer le  $\text{C}_2\text{H}_4$ .

Tableau 5-5: Résumé des tendances observées pour les polluants et la consommation spécifique de carburant pour les deux alcools comparés à l'isooctane

|                | <b>Csc</b> | <b>CO<sub>2</sub></b> | <b>HC Totaux</b> | <b>CO</b>      | <b>NO<sub>x</sub></b> | <b>C<sub>2</sub>H<sub>4</sub></b> |
|----------------|------------|-----------------------|------------------|----------------|-----------------------|-----------------------------------|
| <b>Butanol</b> | +34%       | +3%                   | -29%             | / <sup>a</sup> | -6%                   | +1115%                            |
| <b>Ethanol</b> | +62%       | +2%                   | -35%             | / <sup>a</sup> | -23%                  | -100%                             |

|                | <b>CH<sub>4</sub></b> | <b>C<sub>2</sub>H<sub>2</sub></b> | <b>C<sub>6</sub>H<sub>6</sub></b> | <b>CH<sub>2</sub>O</b> | <b>CH<sub>3</sub>CHO</b> |
|----------------|-----------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|------------------------|--------------------------|
| <b>Butanol</b> | -100%                 | -19%                              | -96%                              | +117%                  | / <sup>a</sup>           |
| <b>Ethanol</b> | -45%                  | -100%                             | -100%                             | +14%                   | / <sup>a</sup>           |

a: pas de tendance significative

Le Tableau 5-5 résume les tendances observées sur les polluants et la consommation spécifique de carburant pour les deux alcools en comparaison avec l'isooctane. L'utilisation des alcools induit une baisse dans la majorité des émissions polluantes, comme les HC totaux, les NO<sub>x</sub>, le CH<sub>4</sub> et le C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>. Il a été observé que ces baisses étaient plus importantes pour les émissions de NO<sub>x</sub> et les HC Totaux dans le cas de l'éthanol et pour les émissions de CH<sub>4</sub> dans le cas du butanol. Cependant, les émissions de CH<sub>2</sub>O sont importantes en particulier avec le butanol. Enfin, en ce qui concerne la consommation spécifique, une augmentation est notée, mais plus importante pour l'éthanol que pour le butanol, dû à son plus faible PCI.

## 5.8 Conclusion

Dans cette première étude, des expériences ont été menées sur un moteur monocylindre à allumage commandé et injection indirecte pour deux points de fonctionnement correspondant à une faible et une moyenne charge. L'isooctane a été utilisé comme carburant de référence et les mélanges à 0, 25, 50, 75 et 100 % en volume d'alcool (éthanol ou butanol) dans l'isooctane ont été comparés.

La consommation spécifique de carburant augmente avec l'ajout d'alcool, d'environ 30% avec le butanol et 60% avec l'éthanol, qui a le plus faible pouvoir calorifique inférieur, ce qui entraîne l'augmentation des émissions de CO<sub>2</sub>. Une légère baisse des émissions de NO<sub>x</sub> et une forte diminution des émissions de HC totaux et de CH<sub>4</sub> ont été observées avec l'ajout d'alcool. Les émissions de C<sub>6</sub>H<sub>6</sub> sont quasi-éliminées avec les deux alcools purs, cela est en corrélation avec la baisse des émissions de C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> pour l'éthanol. Une plus forte baisse des émissions de suies peut ainsi être attendue avec l'éthanol qu'avec le butanol à cause d'une plus faible diminution des émissions de C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>. Les émissions de CH<sub>2</sub>O augmentent légèrement seulement pour les mélanges à l'éthanol, mais de manière importante dans le cas du butanol. Il est enfin important de noter que les émissions des espèces non-réglées (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>, CH<sub>2</sub>O et CH<sub>3</sub>CHO) sont plus faibles à plus forte charge à cause de la température cylindre plus élevée.

Dans le but d'identifier les chemins préférentiels et les espèces chimiques importantes lors de l'oxydation des différents carburants, des simulations numériques avec le code PSR ont été réalisées dans le but de conforter les hypothèses de cinétiques apportées lors des explications. Enfin, le butanol semble donc avoir des avantages par rapport à l'éthanol, comme une plus faible consommation spécifique de carburant et des émissions de  $\text{CH}_4$  moins importantes. Cependant, le fait de brûler des mélanges à fortes concentrations d'alcools induit une augmentation des émissions de  $\text{CH}_2\text{O}$ , espèces fortement cancérigènes.



## CONCLUSION

L'objectif de ce travail de thèse était de mettre en évidence le potentiel de l'utilisation du butanol, seul ou en mélange avec l'isooctane dans les moteurs à allumage commandé, en s'attardant tout particulièrement sur le déroulement de la combustion et en finalité sur les émissions polluantes, en comparaison avec un autre alcool plus communément utilisé, l'éthanol. Des mélanges composés de 0, 25, 50, 75 et 100% d'alcool en volume dans l'isooctane, pris comme monocomposant représentatif de l'essence ont ainsi été étudiés.

Dans une première partie, la vitesse de combustion laminaire de ces mélanges a été déterminée à partir de la technique de la propagation sphérique, en fonction de la pression et de la richesse, dans une enceinte à volume constant. Il a été noté que l'ajout d'alcool permet d'augmenter la vitesse de combustion laminaire sur l'ensemble de la plage de richesse, l'éthanol ayant un impact plus important que le butanol. Lorsque la pression initiale augmente, les vitesses de combustion laminaire des trois carburants purs deviennent très proches, voire quasi identiques pour les deux alcools. L'ajout de butanol permet d'augmenter linéairement la vitesse de combustion laminaire, contrairement au cas de l'éthanol. A l'aide des longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés, il a été noté que la flamme d'éthanol était moins sensible à l'étirement et aux instabilités thermo-diffusives que l'isooctane et le butanol. Pour ces deux carburants, en mélange riche, la longueur de Markstein devient négative, ce qui implique une forte dépendance aux instabilités thermo-diffusives, et donc un début de cellularité de la flamme. A noter que ces tendances ont été remarquées à faibles pressions, et non pas à haute pression, où aucune tendance ne se dégage entre les carburants. Enfin, une corrélation sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la pression, de la richesse et de la concentration d'alcool a été proposée.

Parallèlement à cela, une étude numérique sur les vitesses de combustion laminaire a été menée, dans le but de valider un nouveau schéma cinétique d'oxydation regroupant l'isooctane, l'éthanol et le butanol, non-publié à l'heure actuelle et développé par P. Dagaut (ICARE). De manière générale, sauf pour l'éthanol à 0.1 MPa, il a été mis en évidence que

les simulations sous-estimaient les données expérimentales, la différence augmentant avec l'augmentation de la pression initiale. Toutefois, la tendance observée expérimentalement a été reproduite avec les simulations, à savoir l'augmentation linéaire de la vitesse de combustion laminaire avec l'ajout de butanol, et non-linéaire avec l'ajout d'éthanol. Puis, des simulations réalisées avec le code PSR de Chemkin, comparativement à des données expérimentales de la littérature sur les trois carburants purs, ont mis en évidence des écarts importants sur les concentrations des espèces intermédiaires, appartenant au sous-mécanisme d'oxydation C0-C4 et connu pour avoir un fort impact sur la vitesse de combustion laminaire. Ceci explique les écarts rencontrés sur les vitesses de combustion laminaire entre les simulations et les résultats expérimentaux. Enfin, une étude de sensibilité, avec le code Premix de Chemkin, sur le débit de carburant, qui est lié à la vitesse de combustion laminaire, a été effectuée, en utilisant les schémas cinétiques d'oxydation des carburants purs. Une forte sensibilité sur la vitesse de combustion laminaire des réactions, appartenant au sous-mécanisme d'oxydation C0-C4, a été trouvée, comme attendu. Dans le même temps, les réactions de décomposition des carburants ont, quant à elles, peu d'impact sur la vitesse de combustion laminaire. Il reste donc un important travail à faire sur la description cinétique du sous-mécanisme d'oxydation C0-C4 dans le schéma cinétique d'oxydation tri-espèces, dans le but de mieux reproduire les vitesses de combustion laminaire des mélanges isooctane/alcools. Toutefois, alors qu'il n'existait pas encore il y a peu de temps un schéma cinétique d'oxydation tri-espèces permettant les mélanges isooctane/alcools, force est de constater que celui proposé ici reproduit certains comportements correctement.

Les conditions thermodynamiques et d'écoulement dans un moteur étant différentes de celles de l'enceinte à volume constant, la caractérisation de la combustion turbulente a été réalisée dans un moteur monocylindre à allumage commandé à accès optiques. L'ajout d'alcool permet d'augmenter la vitesse de propagation de la combustion dans les toutes premières phases, l'éthanol ayant un impact plus important que le butanol. En appauvrissant le mélange, les écarts avec l'isooctane augmentent, confirmant ainsi l'effet positif et stabilisant de l'ajout d'alcools en mélange pauvre. Enfin, en corrélant ces résultats avec les vitesses de combustion laminaire et le taux d'étirement, il a été noté que les phases initiales de la

propagation de la combustion étaient pilotées au tout début par l'étirement de la flamme, puis après un certain rayon de flamme, par les vitesses de combustion laminaire.

Enfin, comme l'ajout d'alcool engendrait des différences de vitesses de combustion et de stabilité de combustion dans un moteur, son impact a été quantifié en termes de performances moteur et d'émissions de polluants réglementés et non-réglementés, en optimisant le réglage du même moteur, mais opaque, pour chaque carburant. Il a été observé qu'avec l'ajout d'alcool, l'avance à l'allumage diminue et que la consommation spécifique de carburant augmente, l'éthanol ayant un plus fort impact que le butanol, ce qui induit une légère augmentation des émissions de  $\text{CO}_2$ . Une baisse des émissions de  $\text{NO}_x$ , ainsi qu'une forte décroissance des émissions de HC totaux ont été remarquées en particulier avec l'ajout d'éthanol. Une forte baisse des émissions de  $\text{CH}_4$ , en particulier avec l'ajout de butanol, et de  $\text{C}_6\text{H}_6$ , pour les deux alcools, ont été notées. L'ajout d'éthanol n'affecte pas les émissions de formaldéhyde, tandis qu'elles augmentent avec l'addition de butanol. Enfin, il a été remarqué que les émissions des espèces non-réglementées ( $\text{C}_6\text{H}_6$ ,  $\text{CH}_2\text{O}$  et  $\text{CH}_3\text{CHO}$ ) étaient plus faibles à forte charge à cause de la température dans le cylindre plus élevée. Pour finir, des simulations numériques, à l'aide du code PSR (CHEMKIN package) et du schéma cinétique d'oxydation du mélange iso-octane/éthanol/butanol de P. Dagaut, ont été réalisées pour confirmer les hypothèses proposées sur les chemins préférentiels, ayant un rôle important dans le processus d'oxydation des carburants.



## PERSPECTIVES

L'étude qui a concerné les vitesses de combustion laminaire, nécessiterait d'être poursuivie afin de considérer l'effet de la température, et ainsi de s'approcher plus des conditions thermodynamiques présentes dans la chambre de combustion des moteurs à allumage commandé actuel et ainsi de généraliser la corrélation. L'étude numérique, initiée sur la sensibilité sur la vitesse de combustion laminaire afin d'améliorer le schéma cinétique développé par P. Dagaut (ICARE) nécessite d'être approfondie pour améliorer le schéma cinétique afin de pouvoir être utilisé en chimie tabulée pour les codes CFD des constructeurs.

Ce travail a permis de rappeler le lien fort entre l'étirement, les vitesses de combustion laminaire et la propagation de la flamme et ce pour les trois carburants. Approfondir cette étude et l'élargir à d'autres carburants, afin de mieux comprendre leurs effets sur l'étirement de la flamme et les longueurs de Markstein du côté des gaz brûlés entre autre, pourraient permettre d'expliquer des phénomènes plus complexes qui se produisent dans le moteur. Une étude parallèle dans une enceinte à volume constant mais turbulente permettrait sûrement de faire une transition intéressante et d'accroître le lien entre la combustion laminaire et la combustion turbulente dans la chambre de combustion moteur.

Enfin, bien que ce travail ait permis de mettre en évidence que le butanol semble avoir quelques avantages par rapport à l'éthanol comme une plus faible consommation spécifique de carburant et des émissions de  $\text{CH}_4$  plus faibles, de nombreux essais sur des points de fonctionnement moteur plus actuel sont nécessaires pour valider le potentiel du butanol, comme par exemple des moteurs downsizés et/ ou à injection directe.



## ANNEXE I

### PRÉSENTATION DES ALCOOLS

#### Risques et dangers liés à l'utilisation des carburants

La présentation des alcools va se poursuivre en s'intéressant aux risques et dangers liés à l'utilisation de l'éthanol et du butanol. Pour ce faire, ces deux alcools sont comparés à l'isooctane et à l'essence, les deux carburants de référence.

D'après les Fiches de sécurité de l'essence (2001a) et de l'isooctane (1993), les risques et dangers liés à leurs utilisations sont relativement importants. Tout d'abord, ces produits sont hautement inflammables, car leur point d'éclair est inférieur à 294 K (Tableau 1-1), ce qui est relativement faible. Les mélanges d'air et de vapeur d'essence/isooctane sont très explosifs. La vapeur d'essence/isooctane étant plus lourde que l'air, elle peut se propager au niveau du sol sur de grandes distances. L'inflammation est alors possible à distance et provoquer un retour de flamme. Ces deux carburants sous forme liquide peuvent accumuler des charges électrostatique par agitation ou écoulement, et sous forme vapeur, ils peuvent s'enflammer facilement par décharge statique.

De même que pour l'isooctane et l'essence, l'éthanol et le butanol sont facilement inflammable, à cause de leur point d'éclair relativement faible (Tableau 1-1), d'après les Fiches de sécurité de l'éthanol (2000a) et du n-butanol (1995a). De plus, leurs vapeurs mélangées à l'air sont très explosives. Les oxydants puissants peuvent réagir vivement avec ces deux alcools, en provoquant des risques d'incendie et d'explosion (Fiche de sécurité de l'éthanol (2000a) et Bonnard *et al.* (2006b)).

L'ensemble de ces carburants peut être absorbé par le corps par inhalation de ces vapeurs, à travers la peau et par ingestion (Fiches de sécurité de l'essence (2001a), de l'isooctane (1993), l'éthanol (2000a) et du n-butanol (1995a)). Leur inhalation peut entraîner des toux,

des vertiges, des pertes de vivacité, des maux de têtes, ainsi que des confusions, de la somnolence et de la lassitude. Des irritations sont possibles aussi. Le contact avec la peau peut provoquer des rougeurs et dessécher la peau, et dans des cas plus graves une dermatite. Enfin, l'ingestion peut induire des nausées, des douleurs abdominales, des vomissements, ainsi que certains symptômes vus dans le cas de l'inhalation. Le contact avec les yeux provoque des douleurs et des rougeurs, et des brûlures dans le cas des alcools (Fiches de sécurité de l'éthanol (2000a) et du n-butanol (1995a)), qui peuvent engendrer des lésions de la cornée.

Si l'essence est avalée, l'aspiration dans les poumons pourrait provoquer une pneumonie chimique (Fiche de sécurité de l'essence (2001a)). Lors d'une exposition à long terme ou répétée, le système nerveux central peut être affecté par l'essence et l'éthanol, ainsi que le foie pouvant aller jusqu'à la cirrhose (Fiches de sécurité de l'essence (2001a) et de l'éthanol (2000a), Bonnard *et al.* (2007b)). L'isooctane peut avoir à termes des effets sur les reins, voire le foie et entraîner une perte de conscience et la mort dans le cas d'une forte exposition (Fiche de sécurité de l'isooctane (1993)). Le butanol peut avoir des effets sur le système nerveux central, qui peut aller jusqu'à une diminution de conscience et une perte d'audition (Fiche de sécurité de n-butanol (1995a)).

Enfin, l'essence est peut-être cancérigène pour l'homme (Fiche de sécurité de l'essence (2001a)). Des anomalies de la reproduction, ainsi que des cancers et des mutations génétiques ont été détectés dans certains cas en cas d'exposition à l'éthanol (Bonnard *et al.* (2007b)), ce qui n'est pas le cas du butanol (Bonnard *et al.* (2006b)).

## ANNEXE II

### COMPARAISON ENTRE LES DONNÉES EXPÉRIMENTALES ET LA LITTÉRATURE SUR LES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE

#### Isooctane

Les résultats de la comparaison entre les données de la littérature et nos valeurs expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour de l'isooctane à une pression initiale de 0.3 MPa sur la Figure-A II-1, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont présentés dans le Tableau-A II-1. Les mêmes conclusions qu'à 0.1 MPa sont observées pour une pression initiale de 0.3 MPa. Il faut noter tout de même que l'écart entre les données issues de la corrélation de Martz *et al.* et nos résultats expérimentaux a baissé légèrement en augmentant la pression initiale, passant d'une valeur moyenne d'écart relatif de 22 (à 0.1 MPa) à 20.8% (soit de 11.7 à 8.2 cm/s sur l'écart absolu moyen) et d'une valeur maximale de 30 à 24%. Cependant, nos résultats se sont éloignés des valeurs provenant des corrélations de Metghalchi et Keck, et de Marshall *et al.*, qui se trouvent maintenant toutes les deux quasi superposées et supérieures à nos résultats avec une erreur relative moyenne de 9%, là où il y avait 5% à 0.1 MPa (soit un passage de 2.3/2.1 à 3.5 cm/s sur l'écart absolu moyen). En ce qui concernent les données de Müller *et al.*, elles s'éloignent de nos valeurs en particulier vers  $\phi=1.0$ , ce que l'on peut constater avec l'augmentation des valeurs moyenne (5 (à 0.1 MPa) à 8%, soit de 2.7 à 3.1 cm/s sur l'écart absolu moyen) et maximale (9 à 13%) de l'écart relatif. Il en est de même avec les données de Gülder avec une augmentation de l'écart relatif moyen de 34 (à 0.1 MPa) à 42%, même si dans le même temps une légère baisse de l'écart absolu moyen est notée. Enfin, les valeurs de Bradley *et al.* et Babkin *et al.* sont parfaitement superposées à nos points (erreur relative moyenne respectivement de 2 et 1%).

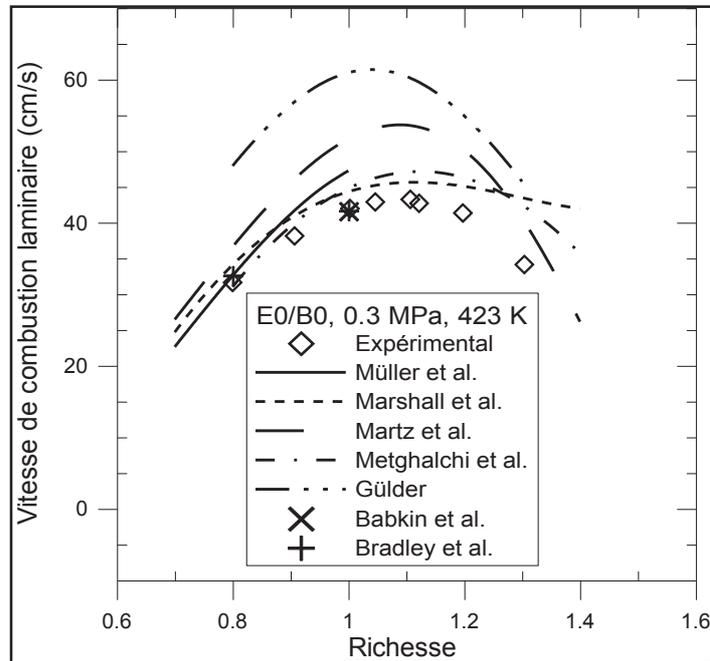


Figure-A II-1: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour de l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.3 MPa

Tableau-A II-1: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.3 MPa

|                                 | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|---------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                 |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Müller <i>et al.</i></b>     | 0.8 à 1           | 3.1                          | 8,0%          | 2,5%    | 12,7%   |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>   | 0.8 à 1.3         | 3.5                          | 9,2%          | 5,3%    | 26,0%   |
| <b>Martz <i>et al.</i></b>      |                   | 8.2                          | 20,8%         | 15,2%   | 24,0%   |
| <b>Metgahlchi <i>et al.</i></b> |                   | 3.5                          | 9,0%          | 1,3%    | 23,1%   |
| <b>Gülder</b>                   |                   | 16.2                         | 41,7%         | 31,7%   | 50,7%   |
| <b>Babkin <i>et al.</i></b>     | 1                 | 0.3                          | 0,7%          | 0,7%    | 0,7%    |
| <b>Bradley <i>et al.</i></b>    | 0.8 et 1          | 0.5                          | 1,6%          | 0,6%    | 2,6%    |

Les résultats de la comparaison entre les données issues de la littérature et nos valeurs expérimentales sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour de l'isooctane à une pression initiale de 1.0 MPa sur la Figure-A II-2, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau-A II-2. De même que précédemment, l'éloignement des points provenant de la corrélation de Metghalchi et Keck (écart relatif moyen : 13 (à 0.5 MPa) à 19%, soit une augmentation de l'écart absolu moyen 4.7 à 5.1 cm/s) et la bonne concordance des points de Bradley *et al.* (écart relatif moyen : 1%) avec nos points sont encore une fois notés. Cependant, cette fois, la valeur de Babkin *et al.* n'est plus aussi proche de nos points qu'avant, ceci est observé avec l'augmentation de 3 (à 0.5 MPa) à 9% de la valeur moyenne de l'écart relatif (soit une augmentation de 1.2 à 2.6 cm/s sur l'écart absolu moyen). Mais ceci reste tout à fait acceptable comme écart absolu. Les valeurs venant de la corrélation de Müller *et al.* ont toujours le même comportement avec des écarts relatifs moyen, minimal et maximal constants. Dans le même temps, les données de Marshall *et al.* semblent toujours s'écarter des nôtres en particulier à  $\phi=1.0$ , ceci est observable aussi avec les valeurs moyenne, minimale et maximale de l'écart relatif qui ont fortement augmentées, passant respectivement de 12, 8 et 15% (à 0.5 MPa) à 19, 18 et 22% (soit une croissance de 3.9 à 4.9 cm/s sur l'écart absolu moyen). Enfin, il a été ajouté, à l'ensemble de ces données, les valeurs expérimentales de Jerzembeck *et al.* (2009e) et de Beeckmann *et al.* (2009a) à 373 K, et malgré la différence de température initiale avec nos points, l'allure de leurs courbes est similaire à la nôtre. Et il est donc aisément possible d'imaginer qu'à une température initiale plus élevée, leurs valeurs de vitesses de combustion laminaire seraient très proches des nôtres.

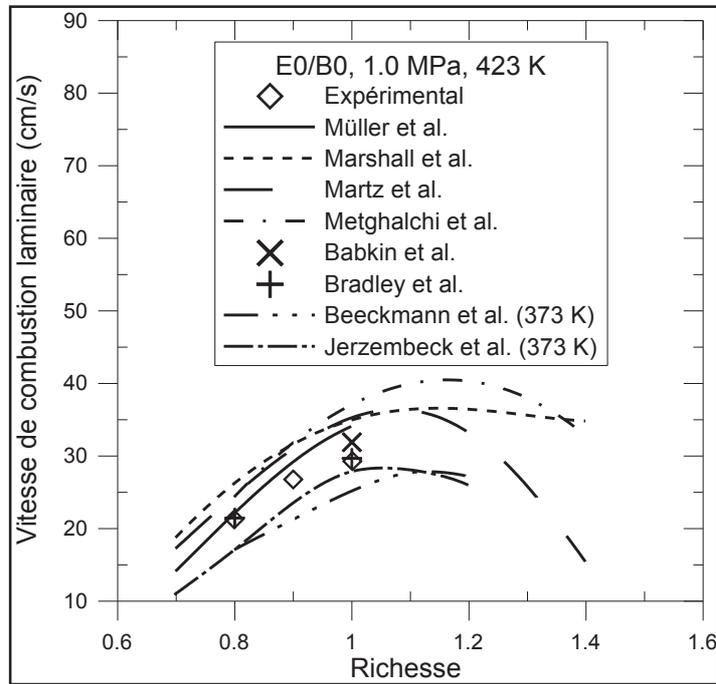


Figure-A II-2: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour de l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 1.0 MPa

Tableau-A II-2: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'isooctane à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 1.0 MPa

|                                 | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|---------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                 |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Müller <i>et al.</i></b>     | 0.8 à 1           | 2.5                          | 9.0%          | 3.0%    | 16.0%   |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>   |                   | 4.9                          | 19.2%         | 17.6%   | 22.4%   |
| <b>Martz <i>et al.</i></b>      |                   | 4.3                          | 16.3%         | 14.0%   | 20.1%   |
| <b>Metgahlchi <i>et al.</i></b> |                   | 5.1                          | 19.1%         | 13.7%   | 26.2%   |
| <b>Babkin <i>et al.</i></b>     | 1                 | 2.6                          | 8.9%          | 8.9%    | 8.9%    |
| <b>Bradley <i>et al.</i></b>    | 0.8 et 1          | 0.3                          | 1.0%          | 0.6%    | 1.3%    |

## Éthanol

Les résultats de la comparaison entre la littérature et l'expérimental sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'éthanol à une pression initiale de 0.3 MPa sur la Figure-A II-3, et les moyennes, minimums et maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau-A II-3. Comme à 0.1 MPa, les données provenant de la corrélation de Gülder se trouvent très au-dessus des nos points expérimentaux. De plus, ses données se sont éloignées des nôtres, puisque la moyenne de l'écart relatif a augmenté de 16 (à 0.1 MPa) à 22% (soit une augmentation de l'écart absolu moyen de 9.8 à 10.6 cm/s). Dans le même temps, les données issues de la corrélation de Marshall *et al.* se trouvent toujours en-dessous de nos valeurs expérimentales, mais elles tendent à se rapprocher (baisse de l'écart absolu moyen de 7.3 (à 0.1 MPa) à 6.1 cm/s). Cependant, cela ne se voit pas sur l'écart relatif moyen, qui augmente de 14 (à 0.1 MPa) à 16%, en partie du à la partie riche ( $\phi > 1.2$ ) qui est mal représentée et donc engendre des écarts relatifs élevés, que l'on constate sur la valeur maximale qui atteint 56%. Les valeurs de la corrélation de Liao *et al.*, qui étaient relativement proches de nos données à 0.1 MPa, sont plus éloignées à 0.3 MPa (écart relatif moyen est passé de 8 à 13%, soit une augmentation de 4.3 à 5.3 cm/s sur l'écart absolu moyen). Enfin, les données venant de la corrélation de Eisazadeh-Far *et al.* restent toujours les plus proches de nos points, toutefois, ils se sont aussi éloignés, comme on peut le constater sur la moyenne de l'écart relatif qui est passé de 4 (à 0.1 MPa) à 10% (soit une augmentation de 2.5 à 4.6 cm/s sur l'écart absolu moyen).

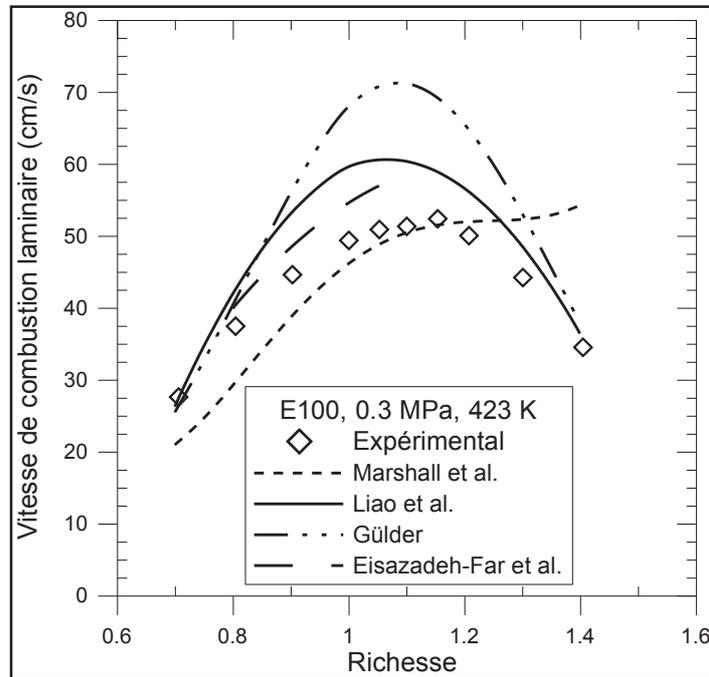


Figure-A II-3: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.3 MPa

Tableau-A II-3: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 0.3 MPa

|                                | Gamme de richesse | Écart absolu moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|--------------------------------|-------------------|------------------------------|---------------|---------|---------|
|                                |                   |                              | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b>  | 0.7 à 1.4         | 6.2                          | 16.1%         | 0.8%    | 55.5%   |
| <b>Liao <i>et al.</i></b>      |                   | 5.3                          | 12.9%         | 3.2%    | 20.8%   |
| <b>Gülder</b>                  |                   | 10.2                         | 22.4%         | 0.8%    | 38.8%   |
| <b>Eisazadeh <i>et al.</i></b> | 0.8 à 1.1         | 4.6                          | 9.7%          | 7.3%    | 13.0%   |

Les résultats de la comparaison entre la littérature et l'expérimental sur les vitesses de combustion laminaire sont tracés en fonction de la richesse pour l'éthanol à une pression initiale de 1.0 MPa sur la Figure-A II-4, et les moyennes, minimums et maximums des écarts

relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre toutes ces données sont répertoriés dans le Tableau-A II-4.

Les données issues de la corrélation de Liao *et al.* sont toujours très au-dessus de nos points expérimentaux et continue de s'en éloigner, comme l'indique l'écart relatif moyen qui est passé de 19 (à 0.5 MPa) à 41% (soit une augmentation de l'écart absolu moyen de 7.2 à 12.1 cm/s). Par contre, les valeurs de la corrélation de Marshall *et al.* se superposent quasiment à nos points, ce qui confirme la tendance entamée précédemment, à savoir une baisse moins rapide des vitesses de combustion laminaire avec la pression, d'où une baisse de la valeur moyenne et maximale de l'écart relatif. De plus, il est possible d'imaginer que les points expérimentaux de Beeckmann *et al.* (2009a) si on les extrapolait jusqu'à 423K seraient vraiment très proches de nos points, puisque les tendances de leurs points et des nôtres sont très similaires.

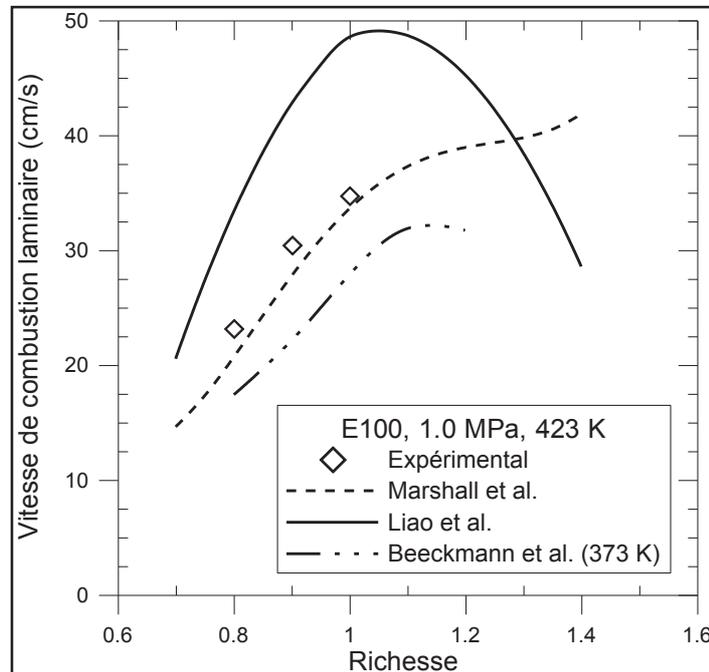


Figure-A II-4: Comparaison entre l'expérimental et la littérature sur les vitesses de combustion laminaire en fonction de la richesse pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 1.0 MPa

Tableau-A II-4: Moyennes, Minimums et Maximums des écarts relatifs, ainsi que l'écart absolu moyen entre les données expérimentales et celles de la littérature pour l'éthanol à une température initiale de 423 K et une pression initiale de 1.0 MPa

|                               | Gamme de<br>richesse | Écart absolu<br>moyen (en cm/s) | Écart relatif |         |         |
|-------------------------------|----------------------|---------------------------------|---------------|---------|---------|
|                               |                      |                                 | Moyenne       | Minimum | Maximum |
| <b>Marshall <i>et al.</i></b> | 0.8 à 1              | 2.3                             | 8.0%          | 3.3%    | 10.9%   |
| <b>Liao <i>et al.</i></b>     |                      | 12.1                            | 41.1%         | 39.7%   | 43.6%   |

### ANNEXE III

#### CORRÉLATION SUR LES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE POUR DES MÉLANGES ISOCTANE/ALCOOLS EN FONCTION DE LA RICHESSE ET DE LA PRESSION INITIALE

En ce qui concerne les mélanges, la corrélation, proposée dans cette étude, reprend le travail mené par Hirasawa *et al.* (2002b), puis par Ji et Egolfopoulos (2011h). Nous allons dans cette partie redonner précisément les différentes étapes pour arriver à leur formulation. En partant de l'analyse phénoménologique simple de la flamme laminaire, sa vitesse peut s'exprimer de la façon suivante (pour un nombre de Lewis,  $Le$ , différent de 1) :

$$\rho_u \cdot S_L^0 = P_u^{\left(\frac{n}{2}-1\right)} \cdot \left[ Le \cdot \frac{\lambda_b}{C_{P,b}} \cdot \frac{B_C}{Ze} \exp\left(\frac{-T_a}{T_{ad}}\right) \right]^{1/2} \quad (\text{III.1})$$

Avec  $T_a$  la température d'activation,  $T_{ad}$  la température adiabatique de flamme,  $\lambda_b$  la conductivité thermique des gaz brûlés,  $C_{P,b}$  la chaleur spécifique molaire à pression constante des gaz brûlés,  $B_C$  le facteur de fréquence et  $Ze$  le nombre de Zeldovich.

Donc cette expression de la vitesse de combustion laminaire, vue en (III.1), peut-être réarrangée, pour une pression donnée, et donnée :

$$S_L^0 = \exp\left(\frac{-T_{am}}{T_{ad}}\right) \quad (\text{III.2})$$

Avec  $T_{am}$  qui est défini comme suit :

$$T_{am} = \frac{T_a}{2} - T_{ad} \cdot \ln \left\{ \left[ Le \cdot \frac{\lambda_b}{C_{P,b}} \cdot \frac{B_C}{Ze} \right]^{1/2} / \rho_u \right\} \quad (\text{III.3})$$

La température adiabatique d'un carburant pur peut être définie comme suit :

$$T_{ad} - T_u = \frac{Q}{N \cdot C_{P,b}} \quad (\text{III.4})$$

Avec  $Q$  la chaleur de réaction et  $N$  le nombre de moles de produits de la réaction.

L'estimation de la chaleur spécifique molaire à pression constante  $C_{p,b}$  se fait à la température adiabatique de flamme et doit prendre en compte l'ensemble des gaz brûlés.

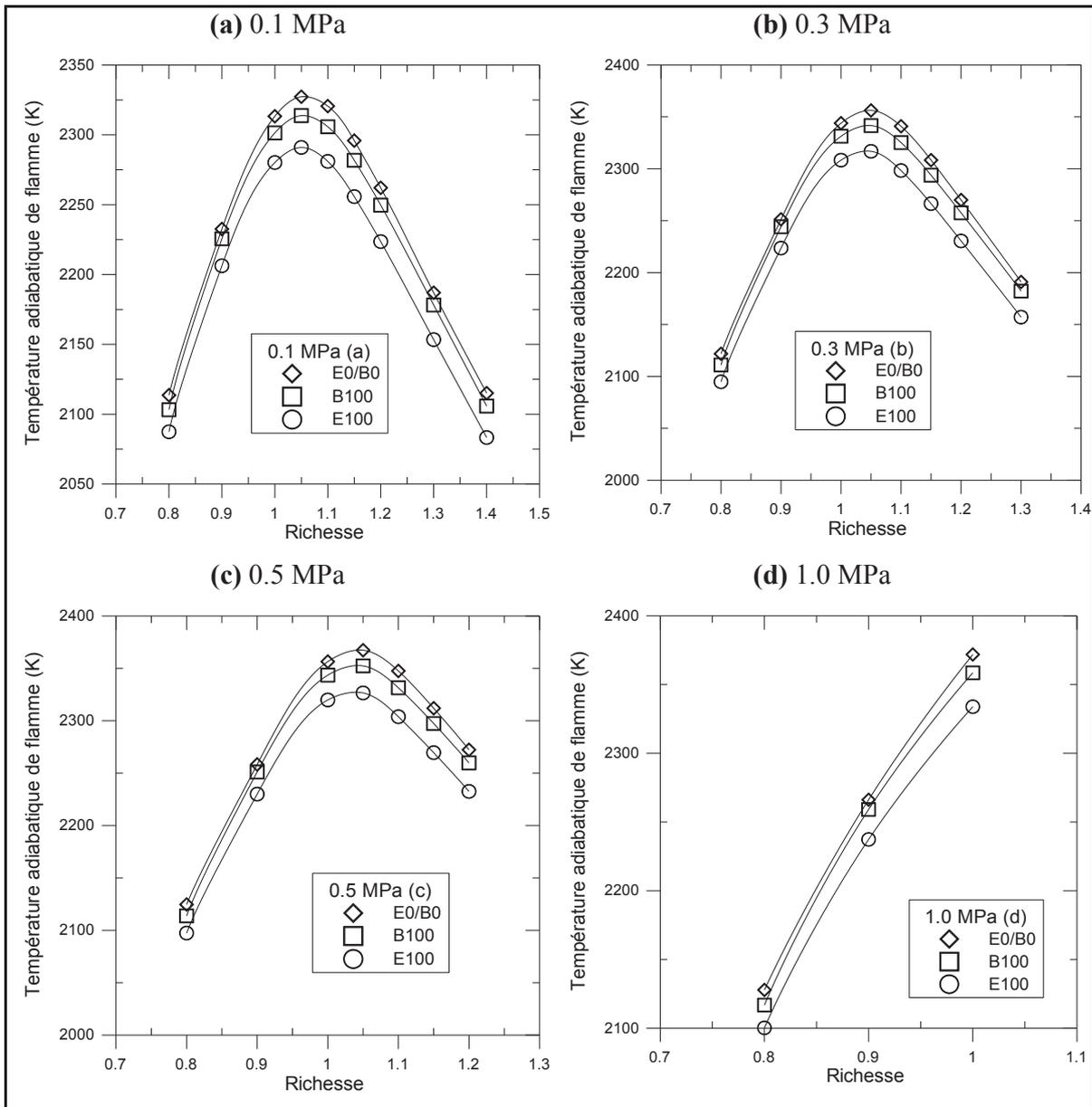
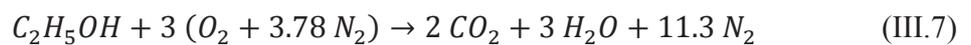
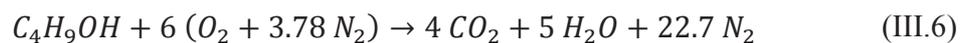
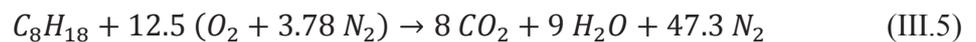


Figure-A III-1: Évolution de la température adiabatique de flamme des carburants purs en fonction de la richesse pour des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d) et une température initiale de 423 K

Dans un premier temps, la température adiabatique de flamme des carburants purs a été calculée à l'aide du programme EQUIL de Chemkin (Kee *et al.* (1989a)) avec le schéma cinétique d'oxydation du mélange isooctane/éthanol/butanol basé sur ceux d'un mélange de butanol et d'une essence modèle (composée d'isooctane, 1-hexène et de toluène) de Dagaut et Togbé (2008d), de l'éthanol de Leplat *et al.* (2010g) et de l'isooctane de Curran *et al.* (2002a). Et elle a été tracée en fonction de la richesse pour des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d), une température initiale de 423 K et pour les trois carburants purs sur la Figure-A III-1. Quelque soit la pression initiale et la richesse, l'isooctane a la température adiabatique de flamme la plus forte devant celle du butanol, puis celle de l'éthanol. De plus, elles sont relativement proches pour les trois carburants : au maximum les températures adiabatiques de flamme du butanol ont un écart absolu d'environ 15 K (soit un écart relatif inférieur à 1%) et de l'éthanol un écart absolu d'environ 40 K (soit un écart relatif inférieur à 2%) avec celles d'isooctane.

Puis, en prenant en compte les gaz brûlés issus des équations de combustion complète de l'isooctane (III.5), du butanol (III.6) et de l'éthanol (III.7) à la stœchiométrie, on montre que les fractions molaires des gaz brûlés sont relativement similaires entre les trois carburants.



Au final, l'évolution de la chaleur spécifique molaire à pression constante  $C_{P,b}$  (calculées à partir des données du site NIST (2011b)) en fonction de la richesse est tracée sur la Figure-A III-2 pour les trois carburants à une température et une pression initiales respectivement de 423 K et 0.1 MPa. Et un très fiable écart est observé entre les trois carburants, environ 1% d'écart relatif maximal entre le butanol et l'isooctane et 2% entre l'éthanol et l'isooctane. Donc, on peut considérer que le  $C_{P,b}$  est constant pour une richesse et une pression données.

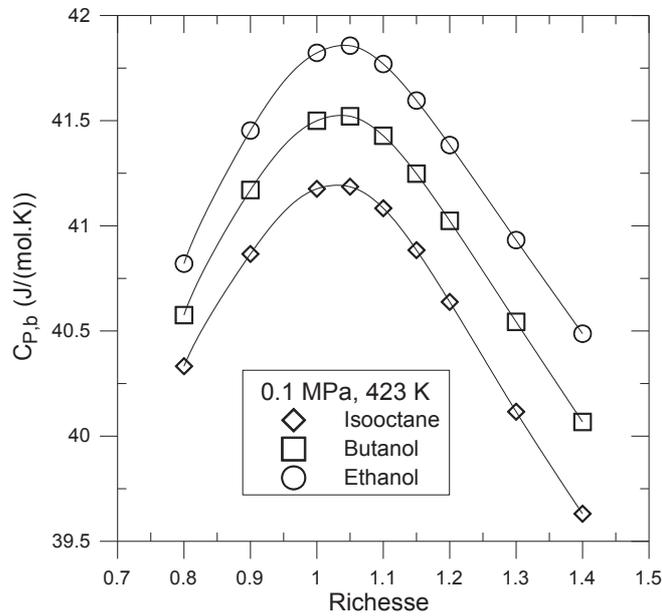


Figure-A III-2: Évolution de la chaleur spécifique molaire à pression constante des gaz brûlés en fonction de la richesse pour les trois carburants pour une pression initiale de 0.1 MPa et une température initiale de 423 K

De manière similaire à l'équation (III.4), la température adiabatique de flamme pour un mélange de deux carburants purs,  $T_{ad,mel}$  peut s'écrire comme :

$$T_{ad,mel} - T_u = \frac{Q_{mel}}{N_{mel} \cdot C_{P,b}} \quad (III.8)$$

Avec :

$$Q_{mel} = Q_{C_8H_{18}} \cdot X_{C_8H_{18}} + Q_{Alc} \cdot X_{Alc} \quad (III.9)$$

$$N_{mel} = N_{C_8H_{18}} \cdot X_{C_8H_{18}} + N_{Alc} \cdot X_{Alc} \quad (III.10)$$

L'indice *mel* signifiant qu'on est en présence d'un mélange de deux carburants, l'indice *Alc* signifiant que c'est un alcool (éthanol ou butanol) et l'indice  $C_8H_{18}$  signifiant que c'est de l'isooctane.

A partir de la fraction volumique d'alcool présent dans l'isooctane et connaissant les masses molaires et les densités respectives de ces carburants, la fraction molaire de chaque carburant peut facilement en être déduit. Pour un  $C_{P,mel}$  constant,  $T_{ad,mel}$  peut s'écrire alors de la manière suivante :

$$T_{ad,mel} = \frac{N_{C_8H_{18}} \cdot X_{C_8H_{18}} \cdot T_{ad,C_8H_{18}} + N_{Alc} \cdot X_{Alc} \cdot T_{ad,Alc}}{N_{mel}} \quad (III.11)$$

D'après Hirasawa *et al.* (2002b), et Ji et Egolfopoulos (2011h), on peut faire l'hypothèse que  $T_{am,mel}$  suit la même formulation que pour  $T_{ad,mel}$ , et donc obtenir que :

$$T_{am,mel} = \chi_{C_8H_{18}} \cdot T_{am,C_8H_{18}} + \chi_{Alc} \cdot T_{am,Alc} \quad (III.12)$$

Avec  $\chi_i$  défini comme suit :

$$\chi_i = \frac{X_i \cdot N_i}{N_{mel}} \quad (III.13)$$

$i$  correspondant à l'un ou l'autre de deux carburants du mélange et  $\chi_{C_8H_{18}} + \chi_{Alc} = 1$

D'après l'équation (III.2), l'estimation de  $T_{am}$  peut se faire en fonction de la vitesse de combustion laminaire et de la température adiabatique de flamme :

$$T_{am,i} = \ln(S_{L,i}^0) \cdot T_{ad,i} \quad (III.14)$$

Comme  $S_{L,i}^0$  et  $T_{ad,i}$  sont connus pour chaque composé du mélange de deux carburants,  $S_{L,mel}^0$  peut ainsi être déterminée pour le mélange :

$$\ln(S_{L,mel}^0(\phi, P_u)) = \frac{\chi_{C_8H_{18}} \cdot T_{ad,C_8H_{18}} \cdot \ln(S_{L,C_8H_{18}}^0(\phi, P_u))}{T_{ad,mel}} + \frac{\chi_{Alc} \cdot T_{ad,Alc} \cdot \ln(S_{L,Alc}^0(\phi, P_u))}{T_{ad,mel}} \quad (III.15)$$

Comme il a été vu que les températures adiabatiques de flamme étaient similaires entre les trois carburants purs, on obtient alors une formulation de la vitesse de combustion laminaire pour un mélange de deux carburants à une richesse et une pression données :

$$S_{L,mel}^0(\phi, P_u) = \exp\left(\chi_{C_8H_{18}} \cdot \ln\left(S_{L,C_8H_{18}}^0(\phi, P_u)\right) + \chi_{Alc} \cdot \ln\left(S_{L,Alc}^0(\phi, P_u)\right)\right) \quad (\text{III.16})$$

## ANNEXE IV

### VALIDATION DE LA CORRÉLATION SUR LES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE DES MÉLANGES ISOCTANE/ALCOOL

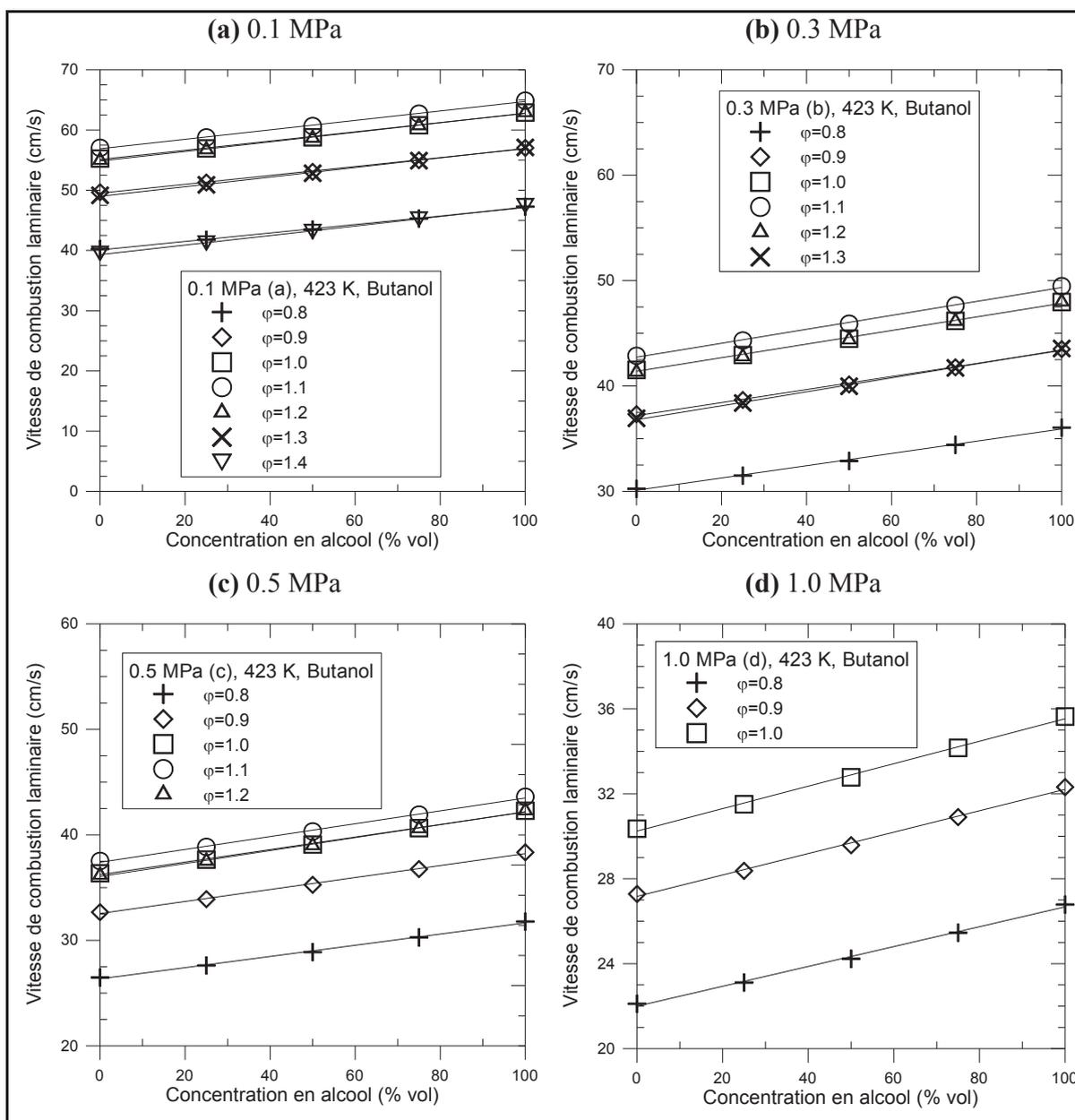


Figure-A IV-1: Vitesses de combustion laminaire issues de la corrélation en fonction de la concentration en butanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

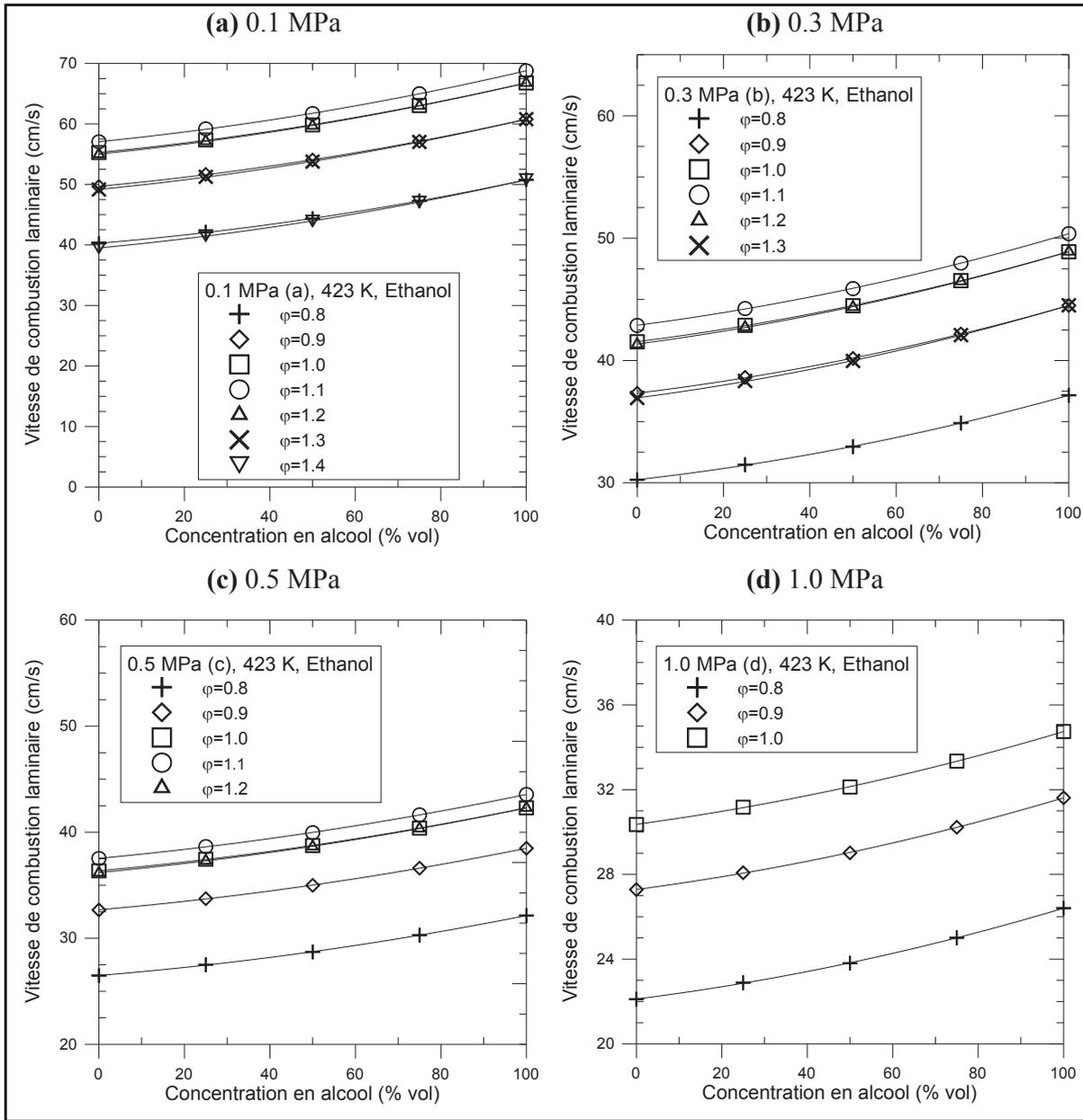


Figure-A IV-2: Vitesses de combustion laminaire issues de la corrélation en fonction de la concentration en éthanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

## ANNEXE V

### PARAMÈTRES DE CONVERGENCE DANS CANTERA

#### Description des paramètres

La résolution, à l'aide de la cinétique chimique, de la vitesse de combustion laminaire, implique de résoudre de forts gradients, comme pour le profil de température, et de fortes courbures, comme pour les profils de concentrations des espèces. Il est donc important de concentrer le maillage dans ces zones et ceci est contrôlé à l'aide des paramètres suivants du logiciel Cantera:

- **RATIO** : ce paramètre permet de limiter le ratio des distances séparant deux couples de points
- **SLOPE** : ce paramètre permet de contrôler le nombre de points insérés dans les régions de forts gradients. Plus sa valeur est faible, plus le nombre de points est important.
- **CURV** : ce paramètre permet de contrôler le nombre de points insérés dans les régions de fortes courbures. Plus sa valeur est faible, plus le nombre de points est important.
- **PRUNE** : ce paramètre permet de supprimer des points de calculs qui sont devenus inutiles au cours du calcul, car lors de la convergence de la solution, il est possible que les zones de forte courbure ou de fort gradient se déplacent. La suppression des points, qui ne se trouvent plus dans les zones à fort gradient ou forte courbure, permet alors d'alléger le calcul.

A ces quatre paramètres, il faut ajouter la vitesse initiale de la flamme estimée afin de faciliter la convergence de la solution.

#### Étude sur la convergence et choix des paramètres

Les fonctions Slope et Curv de Cantera vont donc jouer un rôle important sur le temps CPU ainsi que sur la valeur de la vitesse de combustion calculée. Afin de quantifier l'impact de ces deux fonctions sur la solution, une étude de leurs impacts a été réalisée.

Pour réaliser ces simulations, les fichiers d'initialisation du calcul ont été utilisés afin de voir l'impact de chaque carburant sur le temps CPU et sur le nombre de points nécessaire à la convergence de la solution. Afin de faciliter la convergence pour tous les carburants (isooctane, éthanol et butanol) et pour les différentes valeurs de Slope et Curv testées, la température initiale a été fixée à 323 K et la pression à 0.1 MPa. De plus, dans chaque cas testé, Slope et Curv ont la même valeur.

Tout d'abord, l'évolution du nombre de points en fonction des valeurs de Slope et Curv pour les trois carburants purs est tracée sur la Figure-A V-1. On remarque dans un premier temps le comportement non-linéaire entre les valeurs Slope et Curve et le nombre de points généré. De plus, le carburant ne semble pas avoir une grande importance sur le nombre de points nécessaire à la convergence des simulations.

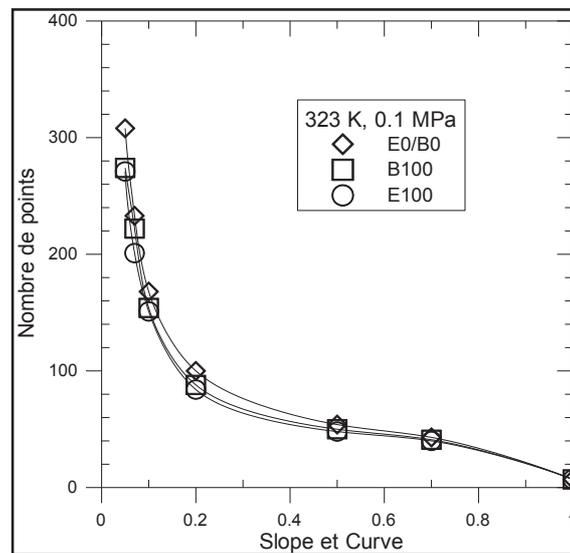


Figure-A V-1: Évolution du nombre de points en fonction des valeurs de Slope et Curv pour les trois carburants purs à 323 K, 0.1 MPa et  $\phi=1.0$

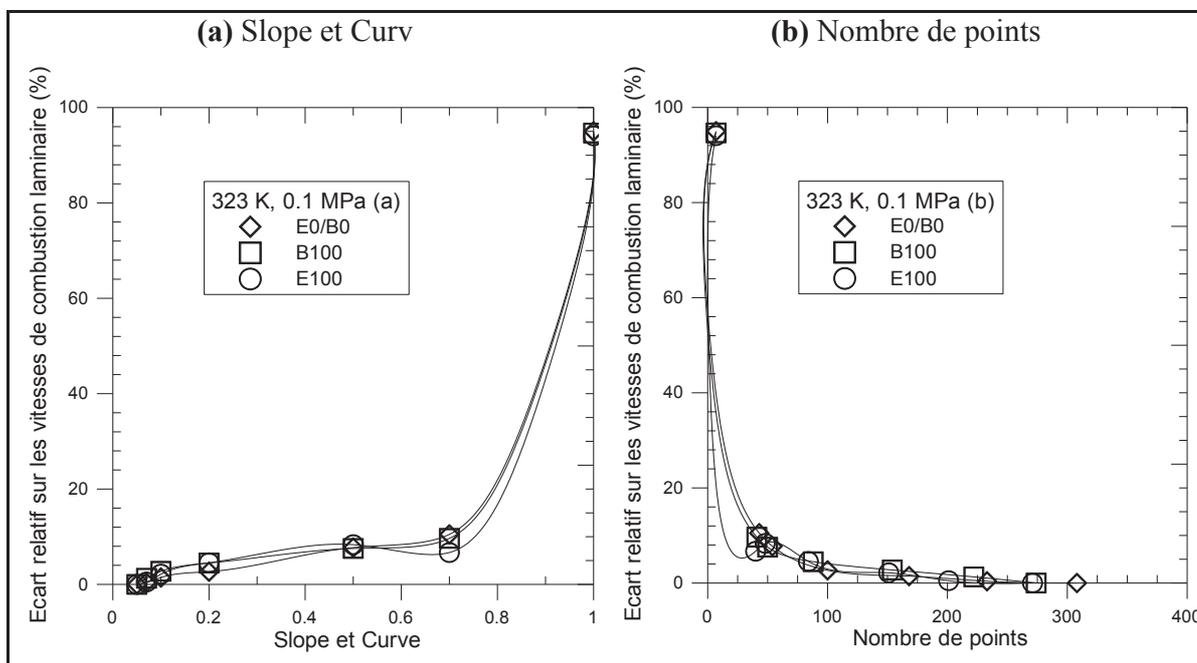


Figure-A V-2: Évolution de l'écart relatif sur les vitesses de combustion laminaire en fonction des valeurs de Slope et Curv (a) et du nombre de points (b) pour les trois carburants purs à 323 K, 0.1 MPa et  $\phi=1.0$

La Figure-A V-2 illustre l'évolution de l'écart relatif des vitesses de combustion laminaire en fonction respectivement des valeurs de Slope et Curv (a) et du nombre de points de calculs (b). L'écart relatif a été calculé à partir de la valeur de la vitesse de combustion laminaire obtenue avec les valeurs de Slope et Curve les plus faibles, c'est-à-dire comme la solution de référence. On remarque que des valeurs de Slope et Curv de 0.7 ou d'un nombre de points de calcul de 50 est minimalement requis pour prédire une vitesse de combustion laminaire à 10% près de la solution la plus fine. Pour des valeurs de Slope et Curv supérieures à 0.7, l'écart relatif augmente fortement et entraîne donc une forte imprécision sur la prédiction de la vitesse de combustion laminaire. Cependant, un écart relatif de 10 % n'est pas acceptable pour autant. Il est nécessaire d'utiliser des valeurs de Slope et Curv d'au moins 0.2, pour permettre de réduire l'écart relatif à moins de 5 % et ce, pour les trois carburants.

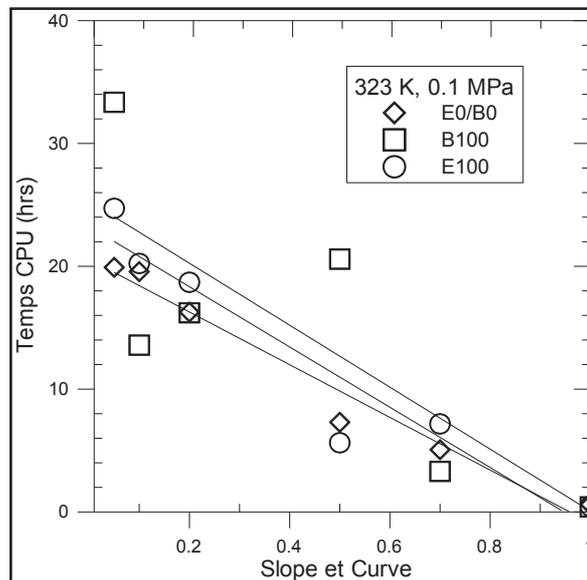


Figure-A V-3: Évolution du temps CPU en fonction des valeurs de Slope et Curv pour les trois carburants purs à 323 K, 0.1 MPa et  $\phi=1.0$

Finalement dans le but de déterminer les valeurs de Slope et Curv qui sont utilisées pour les autres simulations, le temps CPU nécessaire à la convergence de la solution est tracé sur la Figure-A V-3 en fonction des valeurs de Slope et Curv. Ceci va permettre de rajouter une condition supplémentaire pour réaliser le choix des paramètres de convergence. Pour l'éthanol et l'isooctane, l'évolution du temps CPU augmente linéairement avec la diminution des valeurs de Slope et Curv, ce qui n'est pas le cas pour le butanol. Le temps CPU pour le butanol atteint près de 35 heures pour la solution la plus fine (Slope et Curv de 0.05) comparativement à 15 heures pour des valeurs de Slope et Curv de 0.1. Donc, le meilleur compromis entre qualité de la prédiction et temps CPU est de choisir des valeurs de Slope et de Curv de 0.1.

Il faut ajouter que ce choix a aussi été fait dans le but de ne pas trop imposer de contraintes dès le départ, pour faciliter la convergence des points, qui demanderaient plus de temps de calcul, comme pour les mélanges pauvres et riches, ainsi que la montée en pression et la réalisation des mélanges isooctane/alcools.

## ANNEXE VI

### COMPARAISON ENTRE LES DONNÉES EXPÉRIMENTALES ET LES SIMULATIONS SUR LES VITESSES DE COMBUSTION LAMINAIRE

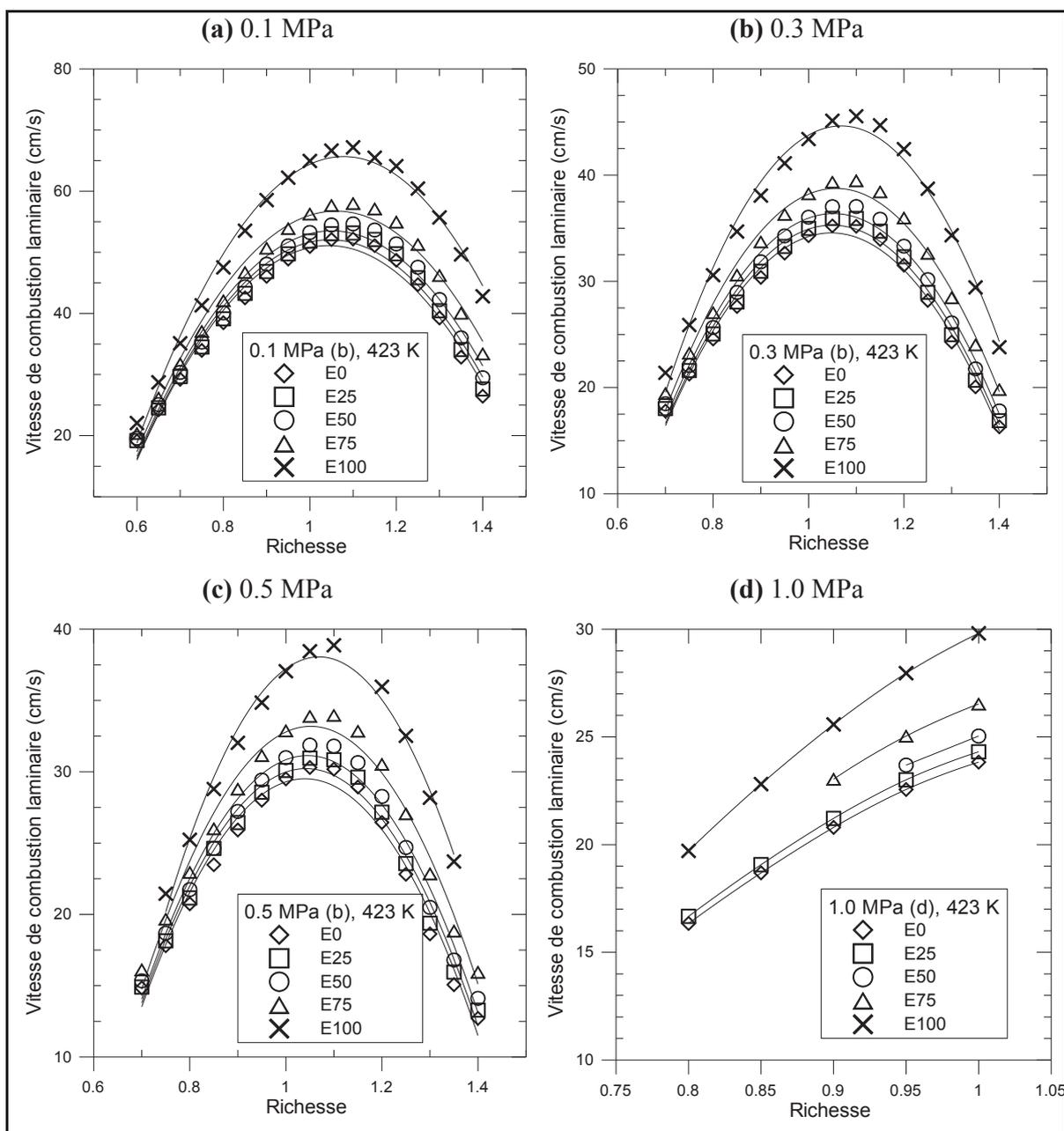


Figure-A VI-1: Simulations de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les mélanges iso-octane/éthanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Tableau-A VI-1: Écarts relatifs entre les résultats des simulations et données expérimentales de vitesses de combustion laminaire pour les mélanges iso-octane/éthanol

|         |        |        |        |        |        |
|---------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 0.1 MPa | E0     | E25    | E50    | E75    | E100   |
| Minimum | 7.82%  | 7.01%  | 7.46%  | 8.20%  | 1.29%  |
| Maximum | 33.40% | 26.91% | 31.06% | 27.17% | 16.87% |
| Moyenne | 13.77% | 11.97% | 13.99% | 12.61% | 5.23%  |
|         |        |        |        |        |        |
| 0.3 MPa | E0     | E25    | E50    | E75    | E100   |
| Minimum | 18.00% | 17.98% | 18.82% | 18.53% | 11.73% |
| Maximum | 29.59% | 32.54% | 32.99% | 30.46% | 23.39% |
| Moyenne | 21.65% | 21.65% | 22.00% | 21.66% | 15.31% |
|         |        |        |        |        |        |
| 0.5 MPa | E0     | E25    | E50    | E75    | E100   |
| Minimum | 18.06% | 17.24% | 19.11% | 18.58% | 11.68% |
| Maximum | 27.12% | 27.27% | 26.57% | 23.01% | 17.09% |
| Moyenne | 21.15% | 20.31% | 21.63% | 20.83% | 13.48% |
|         |        |        |        |        |        |
| 1.0 MPa | E0     | E25    | E50    | E75    | E100   |
| Minimum | 18.64% | 21.73% | 20.78% | 18.99% | 14.22% |
| Maximum | 23.49% | 24.56% | 21.62% | 21.10% | 16.02% |
| Moyenne | 21.69% | 23.41% | 21.20% | 20.04% | 15.25% |

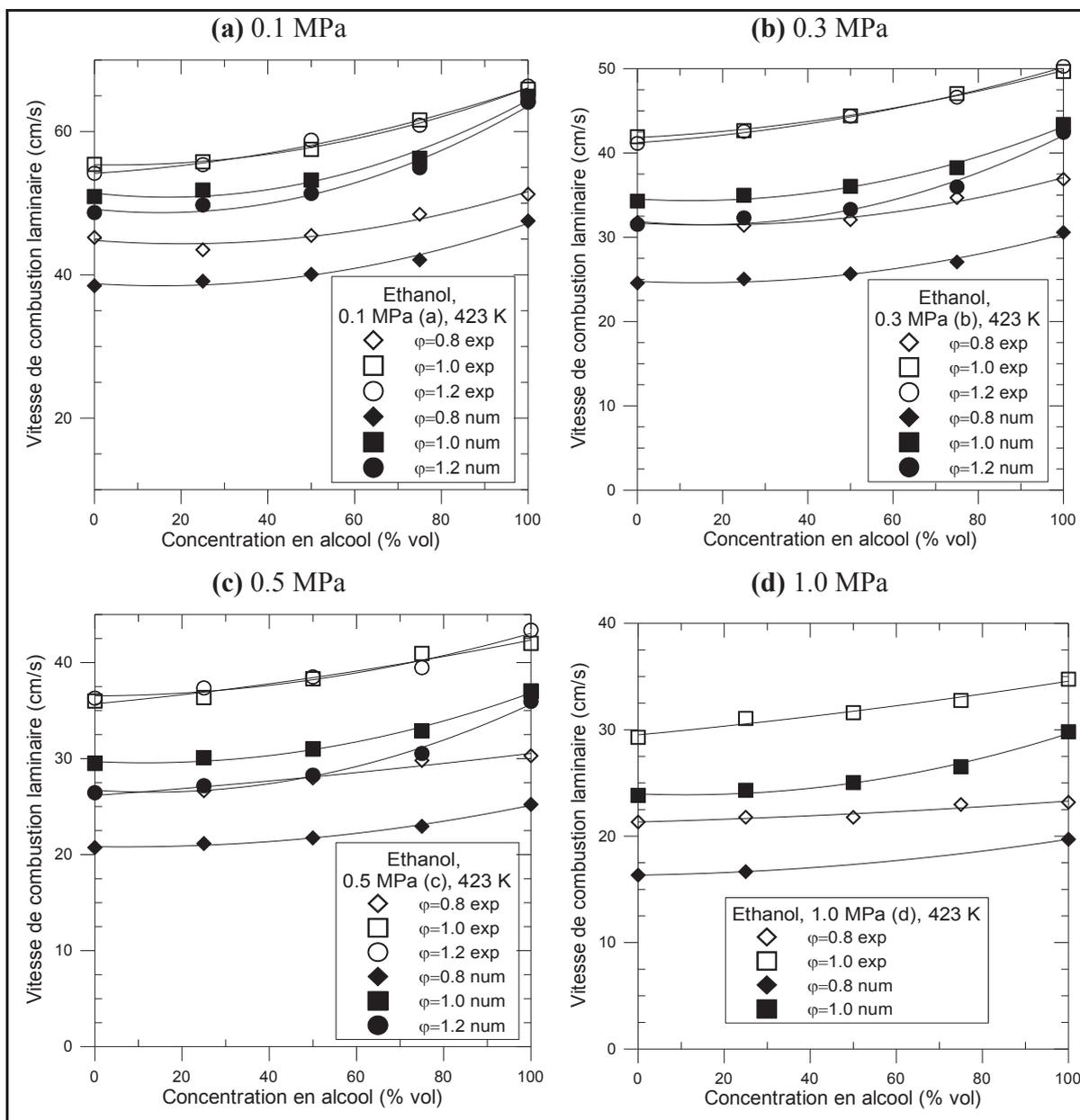


Figure-A VI-2: Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesses de combustion laminaire en fonction de la concentration en éthanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

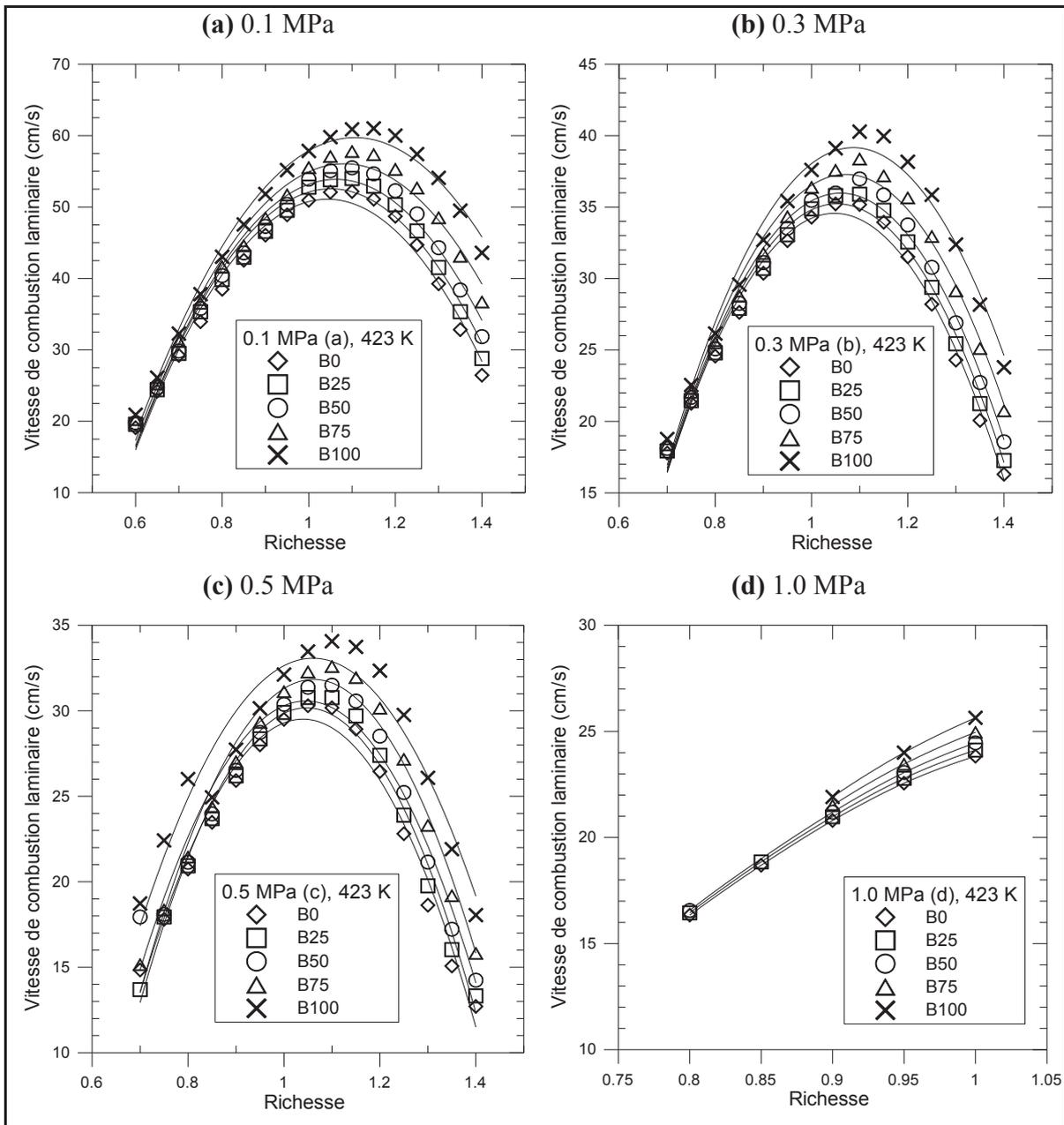


Figure-A VI-3: Simulations de vitesse de combustion laminaire en fonction de la richesse pour les mélanges iso-octane/butanol à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

Tableau-A VI-2: Écarts relatifs entre les résultats des simulations et données expérimentales de vitesses de combustion laminaire pour les mélanges isoctane/butanol

|         |        |        |        |        |        |
|---------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 0.1 MPa | B0     | B25    | B50    | B75    | B100   |
| Minimum | 7.82%  | 7.40%  | 7.32%  | 5.57%  | 4.10%  |
| Maximum | 33.40% | 29.33% | 21.37% | 15.07% | 15.90% |
| Moyenne | 13.77% | 13.48% | 12.20% | 10.03% | 7.44%  |
|         |        |        |        |        |        |
| 0.3 MPa | B0     | B25    | B50    | B75    | B100   |
| Minimum | 18.00% | 19.67% | 19.63% | 20.41% | 20.19% |
| Maximum | 29.59% | 32.12% | 31.00% | 30.17% | 28.06% |
| Moyenne | 21.65% | 23.96% | 23.96% | 23.83% | 23.70% |
|         |        |        |        |        |        |
| 0.5 MPa | B0     | B25    | B50    | B75    | B100   |
| Minimum | 18.06% | 16.94% | 20.47% | 21.15% | 14.71% |
| Maximum | 27.12% | 24.50% | 26.08% | 25.16% | 27.99% |
| Moyenne | 21.15% | 19.83% | 22.91% | 22.79% | 23.67% |
|         |        |        |        |        |        |
| 1.0 MPa | B0     | B25    | B50    | B75    | B100   |
| Minimum | 18.64% | 15.93% | 19.76% | 22.84% | 28.51% |
| Maximum | 23.49% | 25.22% | 26.75% | 28.38% | 28.40% |
| Moyenne | 21.69% | 21.97% | 22.00% | 25.69% | 28.08% |

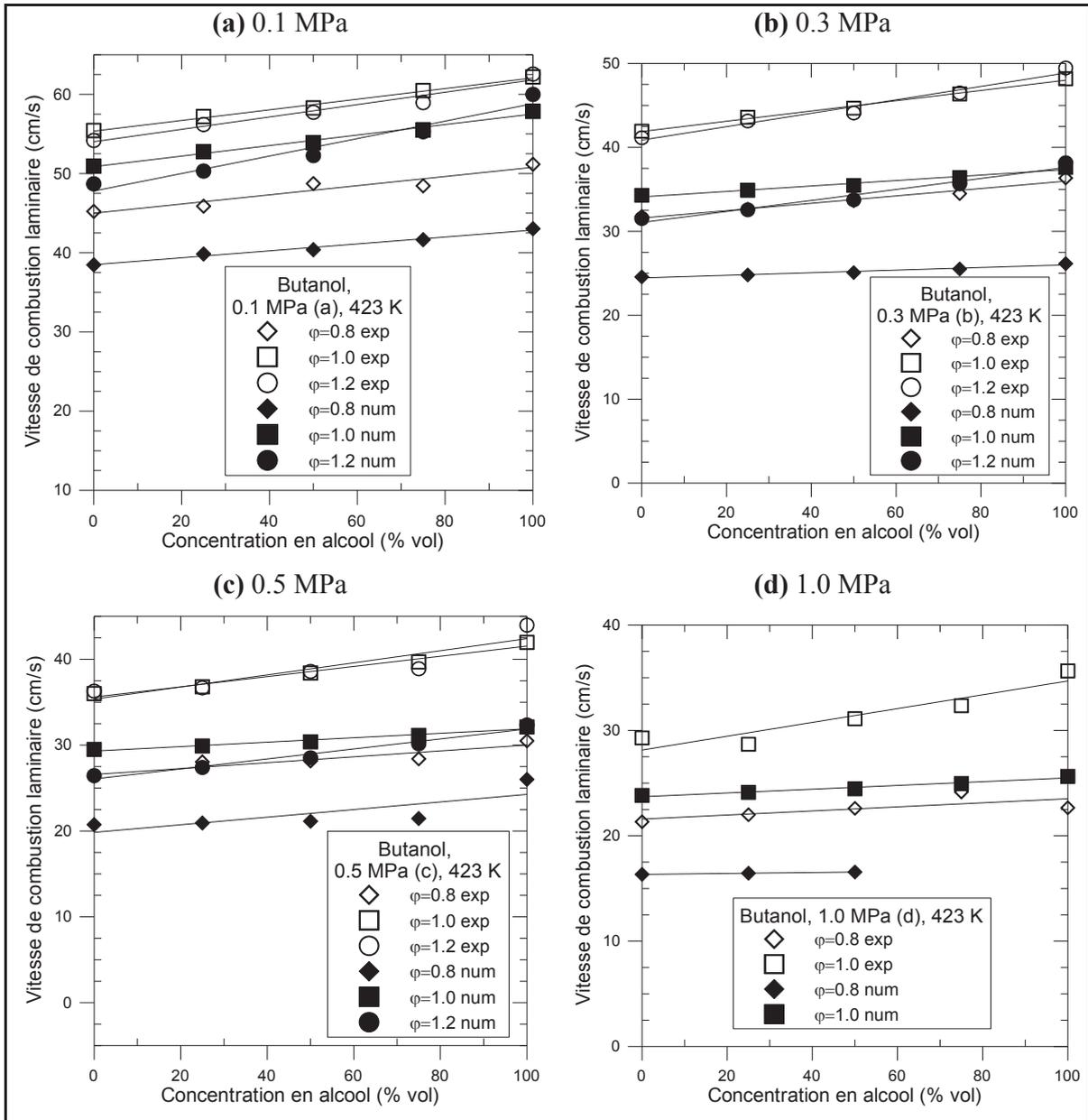


Figure-A VI-4: Comparaison entre simulations et données expérimentales de vitesses de combustion laminaire en fonction de la concentration en butanol pour différentes richesses à une température initiale de 423 K et des pressions initiales de 0.1 MPa (a), 0.3 MPa (b), 0.5 MPa (c) et 1.0 MPa (d)

## ANNEXE VII

### INFLUENCE DE L'AJOUT D'ALCOOL SUR LA PROPAGATION DE LA COMBUSTION DANS UN MOTEUR TRANSPARENT À ALLUMAGE COMMANDÉ

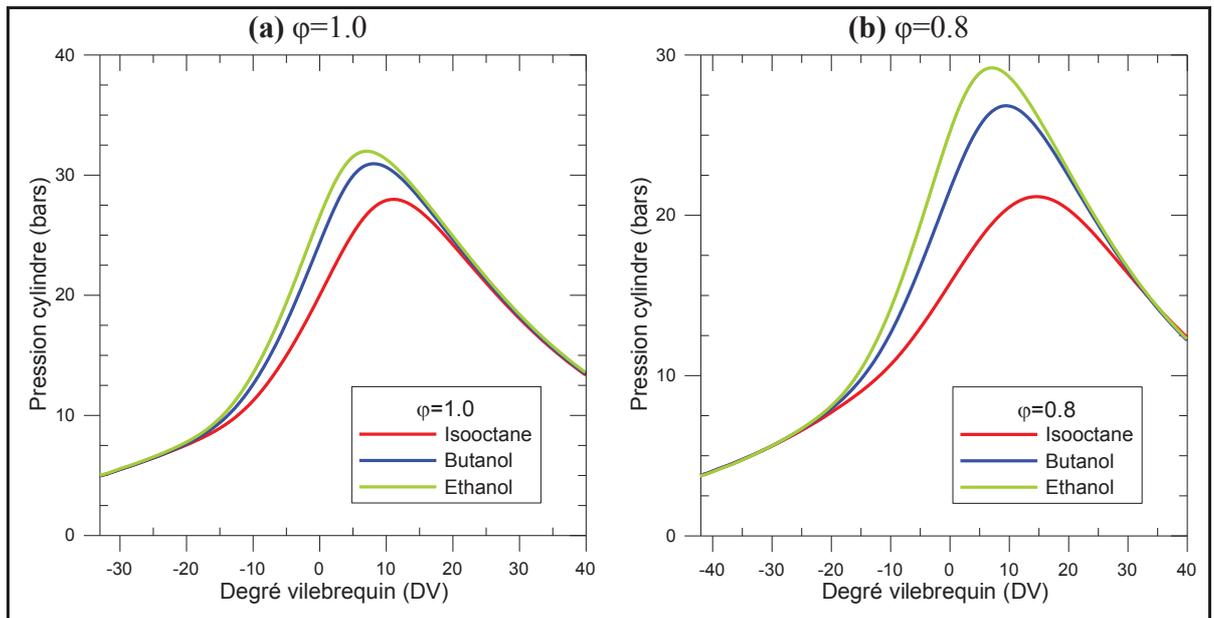


Figure-A VII-1 : Évolution de la pression cylindre en fonction de l'angle de vilebrequin à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour les trois carburants purs

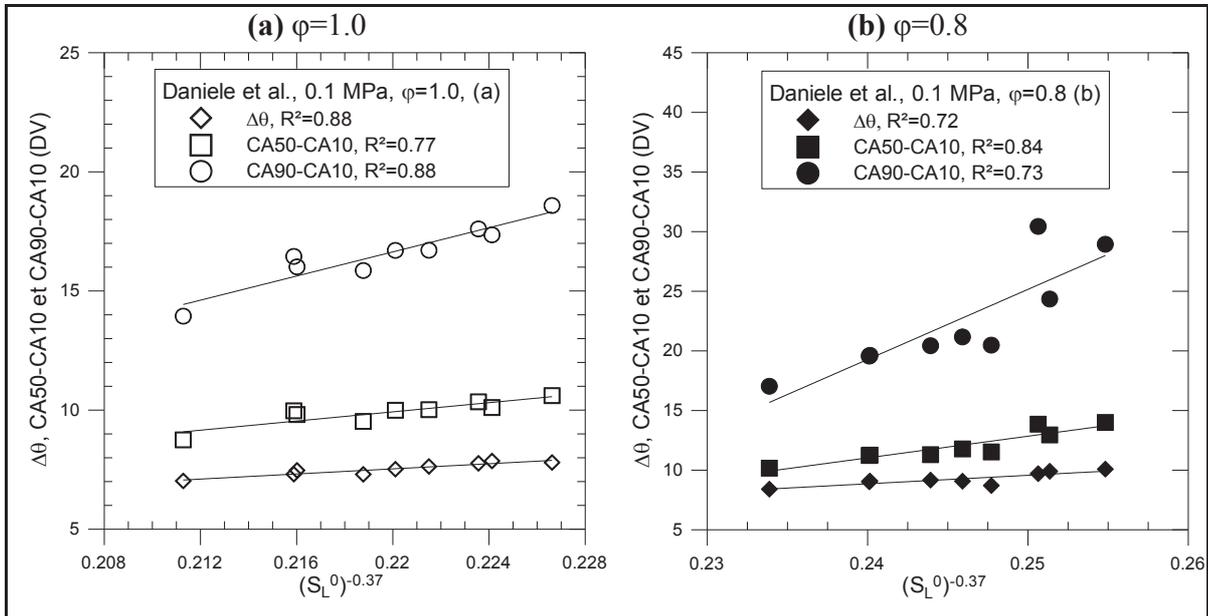


Figure-A VII-2 : Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Daniele et al. (2011e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.1 MPa

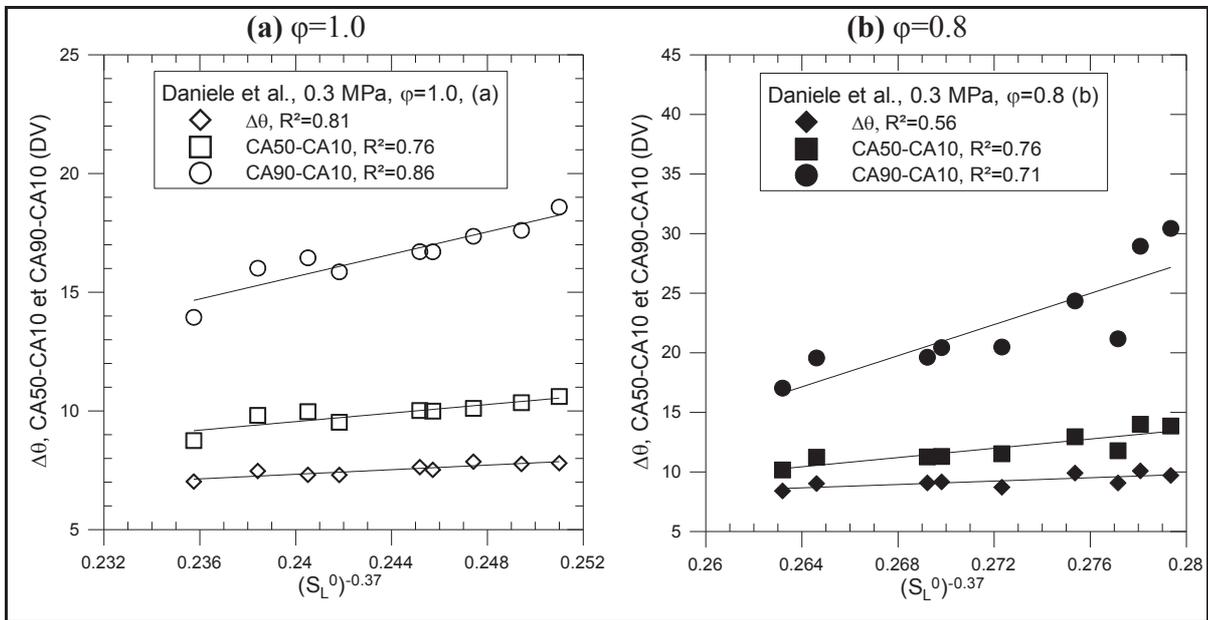


Figure-A VII-3 : Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Daniele et al. (2011e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.3 MPa

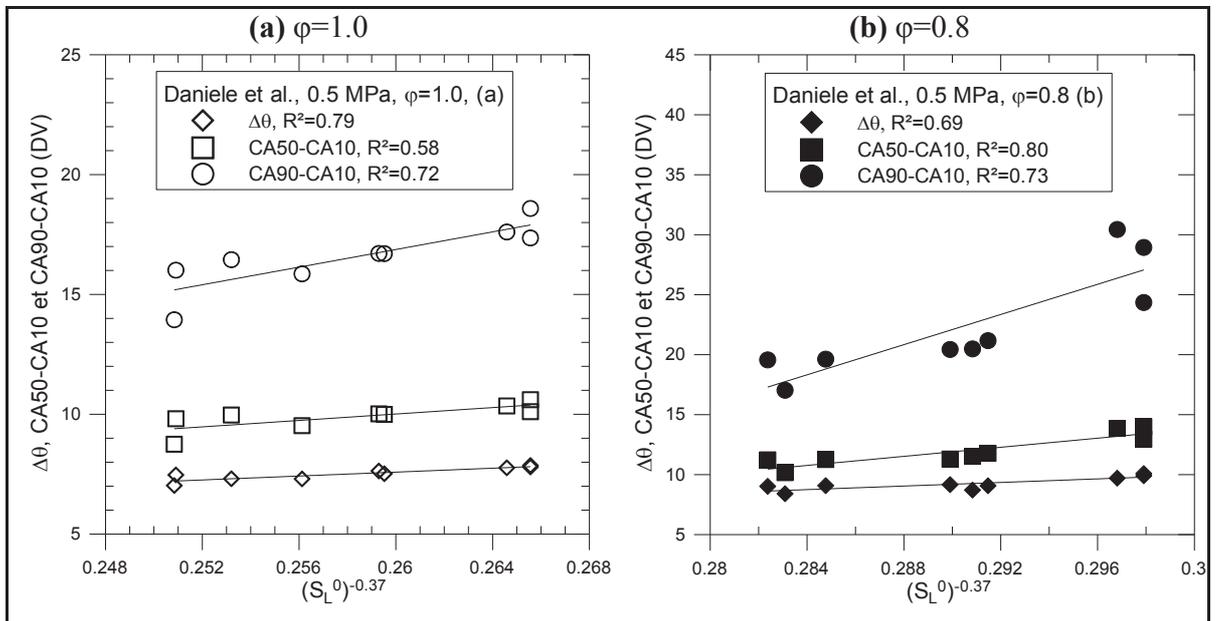


Figure-A VII-4: Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Daniele et al. (2011e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 0.5 MPa

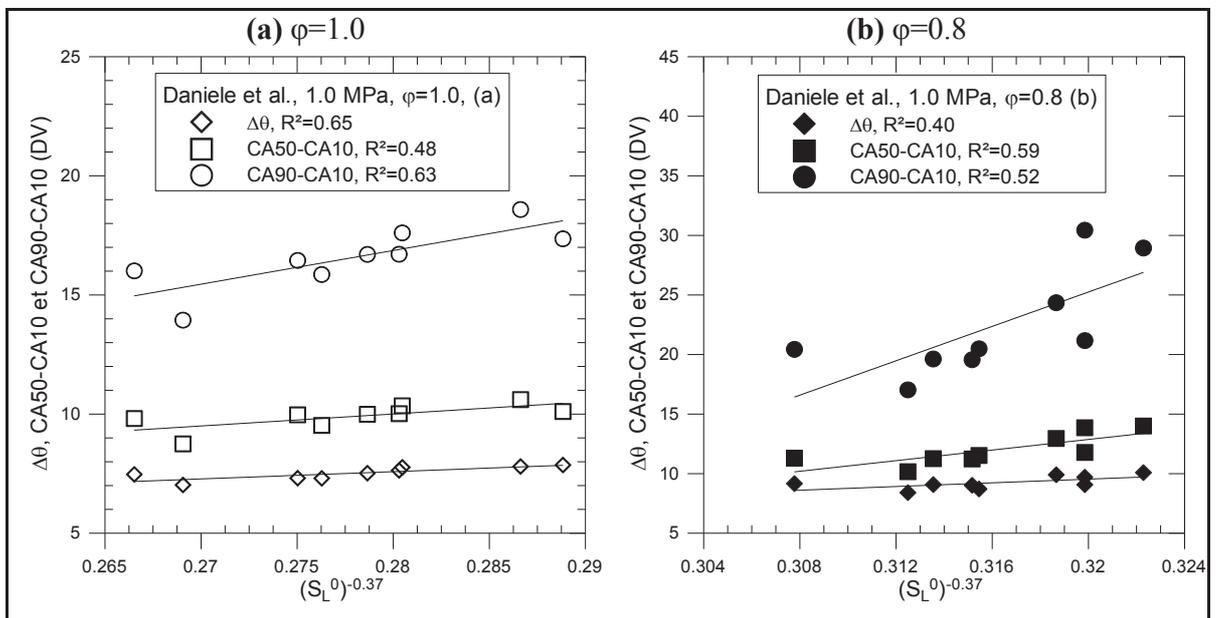


Figure-A VII-5: Évolution de  $\Delta\theta$ , CA50-CA10 et CA90-CA10 en fonction de la vitesse de combustion laminaire (corrélation de Daniele et al. (2011e)) à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b) pour l'ensemble des carburants étudiés et une pression initiale de 1.0 MPa

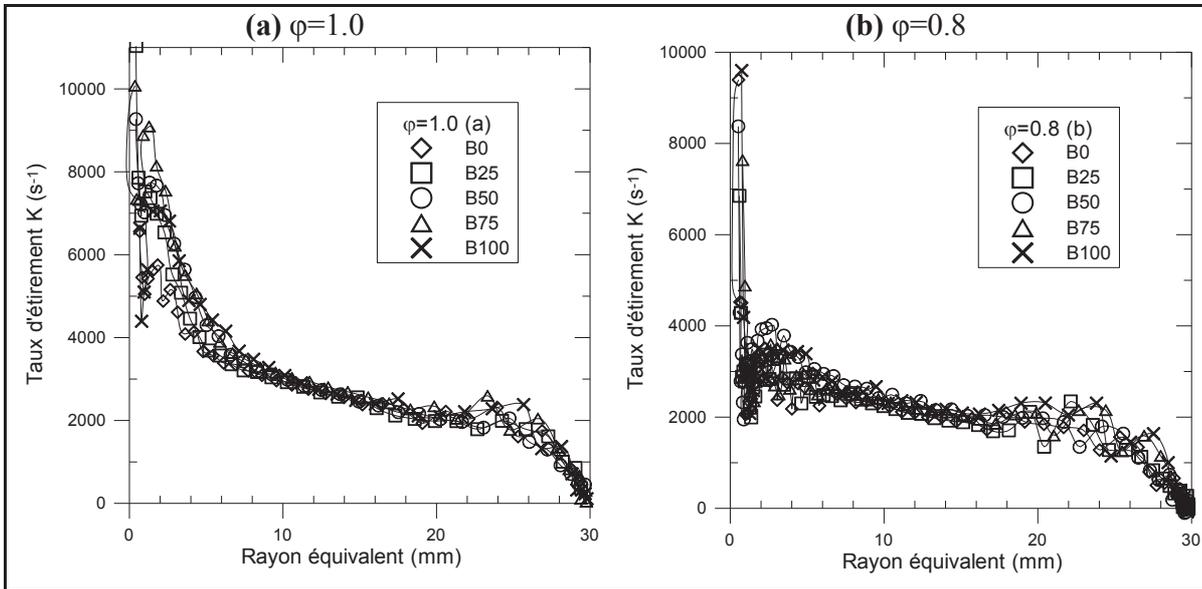


Figure-A VII-6: Évolution du taux d'étirement  $K$  en fonction du rayon équivalent pour les mélanges isooctane/butanol purs à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b)

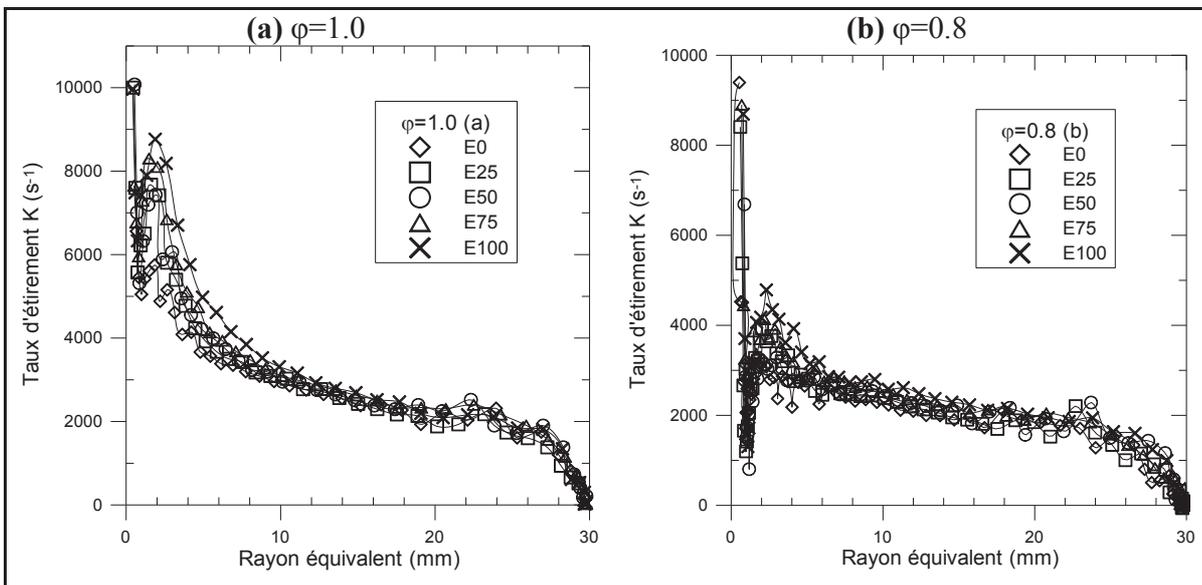


Figure-A VII-7: Évolution du taux d'étirement  $K$  en fonction du rayon équivalent pour les mélanges isooctane/éthanol purs à  $\phi=1.0$  (a) et à  $\phi=0.8$  (b)

## LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- (1993, 30/05/2011). "Trimethyl-2,2,4 Pentane." Retrieved 30/05/2011, 2011, from [http://training.itcilo.it/actrav\\_cdrom2/fr/osh/ic/nfrn0496.html](http://training.itcilo.it/actrav_cdrom2/fr/osh/ic/nfrn0496.html).
- (1995a, 30/05/2011). "1-Butanol." Retrieved 30/05/2011, 2011, from <http://www.cdc.gov/niosh/ipcsnfrn/nfrn0111.html>.
- (2000a, 30/05/2011). "Ethanol." Retrieved 30/05/2011, 2011, from <http://www.cdc.gov/niosh/ipcsnfrn/nfrn0044.html>.
- (2001a, 30/05/2011). "Essence." Retrieved 30/05/2011, 2011, from <http://www.cdc.gov/niosh/ipcsnfrn/nfrn1400.html>.
- (2011a, 20/06/2011). "Evolution des émissions de CO2 en Europe." from <http://www.iea.org/about/indexfr.asp>.
- (2011b, 17/10/2011). "NIST Standard Reference Data." from [webbook.nist.gov/chemistry/](http://webbook.nist.gov/chemistry/).
- Ahmed S. S., Mau, Moreac G. and Zeuch T. (2007a). "A comprehensive and compact n-heptane oxidation model derived using chemical lumping." *Physical Chemistry Chemical Physics* **9**(9): 1107-1126.
- Alasfour F. N. (1997a). "Butanol - a single-cylinder engine study: availability analysis." *Applied Thermal Engineering* **17**(6): 537-549.
- Alasfour F. N. (1998a). "NOx emission from a spark ignition engine using 30% iso-butanol-gasoline blend: Part 1 - Preheating inlet air." *Applied Thermal Engineering* **18**(5): 245-256.
- Alasfour F. N. (1998b). "NOx emission from a spark ignition engine using 30% Iso-butanol-gasoline blend: Part 2 - ignition timing." *Applied Thermal Engineering* **18**(8): 609-618.
- Alasfour F. N. (1999a). "Effect of using 30% iso-butanol-gasoline blend on hydrocarbon emissions from a spark-ignition engine." *Energy Sources* **21**(5): 379-394.
- Aleiferis P. G., Malcolm J. S., Todd A. R., Cairns A. and Hoffman H. (2008a). "An Optical Study of Spray Development and Combustion of Ethanol, Iso-Octane and Gasoline Blends in a DISI Engine." *SAE*(2008-01-0073).
- Aleiferis P. G., Serras-Pereira J., van Romunde Z., Caine J. and Wirth M. (2010a). "Mechanisms of spray formation and combustion from a multi-hole injector with E85 and gasoline." *Combustion and Flame* **157**(4): 735-756.

- Aleiferis P. G., Taylor A. M. K. P., Ishii K. and Urata Y. (2004a) "The nature of early flame development in a lean-burn stratified-charge spark-ignition engine." Combustion and Flame **136**, 283-302.
- Babkin V. S., V'yun A. V. and Kozachenko L. S. (1967). "Determination of burning velocity from the pressure record in a constant-volume bomb." Combustion, Explosion, and Shock waves **3**(3): 362-370.
- Ballerini D. and Alazard-Toux N. (2006a). Les biocarburants, TECHNIP.
- Baulch D. L., Cobos C. J., Cox R. A., Esser C., Frank P., Just T., Kerr J. A., Pilling M. J., Troe J., Walker R. W. and Warnatz J. (1992a). "Evaluated kinetic data for combustion modelling." The Journal of Physical Chemistry **21**: 411-750.
- Baulch D. L., Cobos C. J., Cox R. A., Frank P., Hayman G., Just T., Kerr J. A., Murrells T., Pilling M. J., Troe J., Walker R. W. and Warnatz J. (1994a). "Summary table of evaluated kinetic data for combustion modeling: Supplement 1." Combustion and Flame **98**(1-2): 59-79.
- Baulch D. L., Drysdale D. D., Duxbury J. and Grant S. J. (1976). Evaluated Kinetic Data for High Temperature Reactions, Vol. 3: Homogeneous Gas Phase Reactions of the O<sub>2</sub>-O<sub>3</sub> System, the CO-O<sub>2</sub>-H<sub>2</sub> System, and of Sulphur-Containing Species. London, Butterworths.
- Beeckmann J., Röhl O. and Peters N. (2009a). "Numerical and Experimental Investigation of Laminar Burning Velocities of iso-Octane, Ethanol and n-Butanol." SAE(2009-01-2784): 1-6.
- Bonnard N., Bastos H., Lafon D., Laudet-Hesbert A., Protois J.-C. and Serre P. (2005a) "Fiche toxicologique de l'isobutanol." INRS, 1-6.
- Bonnard N., Brondeau M.-T., Falcy M., Jargot D., Schneifer O. and Serre P. (2006b) "Fiche toxicologique du Butan-1-ol." INRS, 1-8.
- Bonnard N., Falcy M., Jargot D. and Pasquier E. (2007b) "Fiche toxicologique de l'éthanol." INRS, 1-8.
- Bradley D., Hicks R. A., Lawes M., Sheppard C. G. W. and Woolley R. (1998c). "The Measurement of Laminar Burning Velocities and Markstein Numbers for Iso-octane-Air and Iso-octane-n-Heptane-Air Mixtures at Elevated Temperatures and Pressures in an Explosion Bomb." Combustion and Flame **115**(1-2): 126-144.

- Bradley D., Lawes M. and Mansour M. S. (2009b). "Explosion bomb measurements of ethanol-air laminar gaseous flame characteristics at pressures up to 1.4 MPa." Combustion and Flame **156**(7): 1462-1470.
- Brewster S. (2007c). "Initial Development of a Turbo-charged Direct Injection E100 Combustion System." SAE(2007-01-3625).
- Brinkman N. D. (1981a). "Ethanol Fuel - A Single-Cylinder Engine Study of Efficiency and Exhaust Emissions." SAE(810345): 191-205.
- Buckmaster J. (1977a). "Slowly varying laminar flames." Combustion and Flame **28**: 225-239.
- California Air Resources Board. (2010b). "Public Workshop on Proposed Revisions to the Low-Emission Vehicle Program." 2011, from <http://www.arb.ca.gov/msprog/levprog/leviii/leviii.htm>.
- Cataluña R., da Silva R., de Menezes E. W. and Ivanov R. B. (2008b). "Specific consumption of liquid biofuels in gasoline fuelled engines." Fuel **87**(15-16): 3362-3368.
- Chen Z. and Ju Y. (2007d) "Theoretical analysis of the evolution from ignition kernel to flame ball and planar flame." Combustion Theory and Modelling **11**, 427-453 DOI: 10.1080/13647830600999850.
- Chong C. T. and Hochgreb S. (2011c). "Measurements of laminar flame speeds of acetone/methane/air mixtures." Combustion and Flame **158**(3): 490-500.
- Chong C. T. and Hochgreb S. (2011d). "Measurements of laminar flame speeds of liquid fuels: Jet-A1, diesel, palm methyl esters and blends using particle imaging velocimetry (PIV)." Proceedings of the Combustion Institute **33**(1): 979-986.
- Cinar C., Topgul T., Yucesu H. S. and Koca A. (2006c). "The effects of ethanol-unleaded gasoline blends and ignition timing on engine performance and exhaust emissions." Renewable Energy **31**(15): 2534-2542.
- Curran H. J., Gaffuri P., Pitz W. J. and Westbrook C. K. (2002a). "A comprehensive modeling study of iso-octane oxidation." Combustion and Flame **129**(3): 253-280.
- Dagaut P., Sarathy S. M. and Thomson M. J. (2009c). "A chemical kinetic study of n-butanol oxidation at elevated pressure in a jet stirred reactor." Proceedings of the Combustion Institute **32**(1): 229-237.

- Dagaut P. and Togbé C. (2008c). "Experimental and Modeling Study of the Kinetics of Oxidation of Ethanol-Gasoline Surrogate Mixtures (E85 Surrogate) in a Jet-Stirred Reactor." Energy and Fuels **22**: 3499-3505.
- Dagaut P. and Togbé C. (2008d). "Oxidation kinetics of butanol-gasoline surrogate mixtures in a jet-stirred reactor: Experimental and modeling study." Fuel **87**(15-16): 3313-3321.
- Daniele S., Jansohn P., Mantzaras J. and Boulouchos K. (2011e). "Turbulent flame speed for syngas at gas turbine relevant conditions." Proceedings of the Combustion Institute **33**(2): 2937-2944.
- Darrieus G. (1945). Propagation d'un front de flamme: essai de théorie des vitesses anormales de déflagration par développement spontané. Unpublished work presented at Congrès de Mécanique Appliquée. Paris, 6th.
- Davis S. G. and Law C. K. (1998d). "Laminar flame speeds and oxidation kinetics of iso-octane-air and n-heptane-air flames." Symposium (International) on Combustion **27**(1): 521-527.
- De Soete G. G. (1985). "Effects of geometrical and aerodynamic induced flame stretch on the propagation of spark fired premixed flames in early stages." Symposium (International) on Combustion **20**(1): 161-168.
- Dernotte J., Mounaim-Rousselle C., Halter F. and Seers P. (2010c). "Evaluation of Butanol-Gasoline Blends in a Port Fuel-Injection, Spark-Ignition engine." Oil and Gas Science and Technology **65**: 345-351.
- Duval G. and Chevalier M. (2005b) "Pétrole: comment gérer la pénurie." Alternatives Economiques **241**.
- Egolfopoulos F. N., Du D. X. and Law C. K. (1992b). A study on ethanol oxidation kinetics in laminar premixed flames, flow reactors, and shock tubes. 24th Symposium (International) on Combustion.
- Eisazadeh-Far K., Moghaddas A., Al-Mulki J. and Metghalchi H. (2011f). "Laminar burning speeds of ethanol/air/diluent mixtures." Proceedings of the Combustion Institute **33**(1): 1021-1027.
- EuroObserv'ER (2011g) "Baromètre Biocarburants." Le journal des énergies renouvelables **204**, 69-93.
- Frankel M. L. and Sivashinsky G. I. (1984a) "On quenching of curved flames." Combustion Science and Technology **40**, 257-268.

- Freech J. E., Kumar K., Huang Y. and Sung C. J. (2004b). Laminar Flame Speeds of Preheated iso-Octane/Air and n-Decane/Air Flames Using Digital Particle Image Velocimetry. 40th AIAA/ASME/SAE/ASEE joint propulsion Conference and Exhibit 2004-3709.
- Furey R. L. and King J. B. (1982a). Emissions, Fuel Economy, and Driveability Effects of Methanol/Butanol/Gasoline Fuel Blends, Toronto, Ont, Can, SAE.
- Gautam M. and Martin II D. W. (2000b) "Combustion characteristics of higher-alcohol/gasoline blends." Proc Instn Mech Engrs **214 (Part A)**, 497-511.
- Gautam M., Martin II D. W. and Carder D. (2000c) "Emissions characteristics of higher alcohol/gasoline blends." Proc Instn Mech Engrs **214 (Part A)**, 165-182.
- Gladstone J. H. and Dale T. P. (1864) "Researches on the refraction, dispersion and sensitiveness of liquids." The Philosophical Transactions of the Royal Society of London **153**, 317-343.
- Goodwin D. G. (2003a). "An open-source, extensible software suite for CVD process simulation." Proceedings of CVD XVI and EuroCVD Fourteen, Electrochem. Soc.: 155-162.
- Grana R., Frassoldati A., Faravelli T., Niemann U., Ranzi E., Seiser R., Cattolica R. and Seshadri K. (2010d). "An experimental and kinetic modeling study of combustion of isomers of butanol." Combustion and Flame **157**(11): 2137-2154.
- Griffiths J. F. and Barnard J. A. (1995b). Flame and Combustion, Edition Blackie Academic and Professional.
- Gu X., Huang Z., Wu S. and Li Q. (2010e). "Laminar burning velocities and flame instabilities of butanol isomers-air mixtures." Combustion and Flame **157**(12): 2318-2325.
- Guerrieri D. A., Caffrey P. J. and Rao V. (1995c). "Investigation into the Vehicle Exhaust Emissions of High Percentage Ethanol Blends." SAE(950777): 85-95.
- Guibet J.-C. (1997b). Carburants et Moteurs, TECHNIP.
- Gülder O. L. (1982b). Laminar burning velocities of methanol, ethanol and isooctane-air mixtures. 19th Symposium (International) on Combustion.
- Gülder O. L. (1984b). "Burning velocities of ethanol-isooctane blends." Combustion and Flame **56**: 261-268.

- Gülder O. L. (1984c). "Correlations of Laminar combustion data for alternative S.I. engine fuels." SAE(8410000): 1-24.
- Halter F., Tahtouh T. and Mounaïm-Rousselle C. (2010f). "Nonlinear effects of stretch on the flame front propagation." Combustion and Flame **157**(10): 1825-1832.
- He B.-Q., Wang J.-X., Hao J.-M., Yan X.-G. and Xiao J.-H. (2003b). "A study on emission characteristics of an EFI engine with ethanol blended gasoline fuels." Atmospheric Environment **37**(7): 949-957.
- Herweg R. and Maly R. R. (1992c). "A Fundamental Model for Flame Kernel Formation on S. I. Engines." SAE(922243).
- Hess G. (2006d). "BP and DuPont to Make "Biobutanol"." Chemical and Engineering News: 2.
- Heywood J. B. (1988a). Internal Combustion Engine Fundamentals, McGraw-Hill.
- Hirasawa T., Sung C. J., Joshi A., Yang Z., Wang H. and Law C. K. (2002b). "Determination of laminar flame speeds using digital particle image velocimetry: Binary Fuel blends of ethylene, n-Butane, and toluene." Proceedings of the Combustion Institute **29**(2): 1427-1434.
- Hoyermann K., Mau and Zeuch T. (2004c). "A detailed chemical reaction mechanism for the oxidation of hydrocarbons and its application to the analysis of benzene formation in fuel-rich premixed laminar acetylene and propene flames." Physical Chemistry Chemical Physics **6**(14): 3824-3835.
- Hsieh W.-D., Chen R.-H., Wu T.-L. and Lin T.-H. (2002c). "Engine performance and pollutant emission of an SI engine using ethanol-gasoline blended fuels." Atmospheric Environment **36**(3): 403-410.
- Huang B., Hu E., Huang Z., Zheng J., Liu B. and Jiang D. (2009d). "Cycle-by-cycle variations in a spark ignition engine fueled with natural gas-hydrogen blends combined with EGR." International Journal of Hydrogen Energy **34**(19): 8405-8414.
- Jacobson M. Z. (2007e). "Effets of Ethanol (E85) versus Gasoline Vehicles on Cancer and Mortality in the United States." Environment Science and Technology **41**: 4150-4157.
- Jerzembeck S., Peters N., Pepiot-Desjardins P. and Pitsch H. (2009e). "Laminar burning velocities at high pressure for primary reference fuels and gasoline: Experimental and numerical investigation." Combustion and Flame **156**(2): 292-301.
- Jeuland N., Montagne X. and Gautrot X. (2004d). "Potentiality of ethanol as a fuel for dedicated engine." Oil and Gas Science and Technology **59**(6): 559-570.

- Ji C. and Egolfopoulos F. N. (2011h). "Flame propagation of mixtures of air with binary liquid fuel mixtures." Proceedings of the Combustion Institute **33**(1): 955-961.
- Ji C., Wang S. and Yan H. (2009f). "Experimental study on Combustion and Emissions Characteristics of a Spark Ignition Engine Blended with Hydrogen." SAE(2009-01-1923): 1-9.
- Jia L.-W., Shen M.-Q., Wang J. and Lin M.-Q. (2005c). "Influence of ethanol-gasoline blended fuel on emission characteristics from a four-stroke motorcycle engine." Journal of Hazardous Materials **123**(1-3): 29-34.
- Jia M. and Xie M. (2006e). "A chemical kinetics model of iso-octane oxidation for HCCI engines." Fuel **85**(17-18): 2593-2604.
- Jin C., Yao M., Liu H., Lee C.-f. F. and Ji J. (2011i). "Progress in the production and application of n-butanol as a biofuel." Renewable and Sustainable Energy Reviews **15**(8): 4080-4106.
- Joulin G. and Clavin P. (1979). "Linear stability analysis of nonadiabatic flames: Diffusional-thermal model." Combustion and Flame **35**(0): 139-153.
- Kee R. J., Rupley F. M. and Miller J. A. (1989a). Chemkin-II: A Fortran chemical kinetics package for the analysis of gas phase chemical kinetics, Sandia National Laboratories.
- Kelley A. P. and Law C. K. (2009g). "Nonlinear effects in the extraction of laminar flame speeds from expanding spherical flames." Combustion and Flame **156**(9): 1844-1851.
- Kobayashi H. (2002d). "Experimental study of high-pressure turbulent premixed flames." Experimental Thermal and Fluid Science **26**(2-4): 375-387.
- Kobayashi H., Kawabata Y. and Maruta K. (1998e). "Experimental study on general correlation of turbulent burning velocity at high pressure." Symposium (International) on Combustion **27**(1): 941-948.
- Kobayashi H., Tamura T., Maruta K., Niioka T. and Williams F. A. (1996a). "Burning velocity of turbulent premixed flames in a high-pressure environment." Symposium (International) on Combustion **26**(1): 389-396.
- Konnov A. A., Meuwissen R. J. and de Goey L. P. H. (2011j). "The temperature dependence of the laminar burning velocity of ethanol flames." Proceedings of the Combustion Institute **33**(1): 1011-1019.

- Kumar K., Freech J. E., Sung C. J. and Huang Y. (2007f). "Laminar Flame Speeds of Preheated iso-Octane/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> and n-Heptane/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> Mixtures." Journal of Propulsion and Power **23**(2): 428-436.
- Landau L. D. (1944). On the theory of slow combustion. Acta Physicochimica, URSS.
- Law C. K. (2006f). Combustion physics, Cambridge University Press.
- Law C. K. and Sung C. J. (2000d). "Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets." Progress in Energy and Combustion Science **26**(4-6): 459-505.
- Leplat N., Dagaut P., Togbé C. and Vandooren J. (2010g). "Numerical and experimental study of ethanol combustion and oxidation in laminar premixed flames and in jet-stirred reactor." Combustion and Flame **158**(4): 705-725.
- Liao S. Y., Jiang D. M., Huang Z. H., Zeng K. and Cheng Q. (2007g). "Determination of the laminar burning velocities for mixtures of ethanol and air at elevated temperatures." Applied Thermal Engineering **27**(2-3): 374-380.
- Lowi A. J. and Carter W. P. L. (1990). "A Method for Evaluating the Atmospheric Ozone Impact of Actual Vehicle Emissions." SAE(900710).
- Lund C. M. (1978). "A General Computer Program for Calculating Time-Dependent Phenomena Involving One-Dimensional Hydrodynamics, Transport, and Detailed Chemical Kinetics." Report No. UCRL-52504, Lawrence Livermore National Laboratory.
- MacLean H. L. and Lave L. B. (2003c). "Evaluating automobile fuel/propulsion system technologies." Progress in Energy and Combustion Science **29**(1): 1-69.
- Malcolm J. S., Aleiferis P. G., Todd A. R., Cairns A., Hume A., Blaxill H., Hoffman H. and Rueckauf J. (2008e). A study of alcohol blended fuels in a new optical spark-ignition engine. Internal Combustion Engines: Performance, Fuel Economy and Emissions Conference, Dec 11-12 2007, Institution of Mechanical Engineers: 223-234.
- Mallard E. and Le Chatelier H. L. (1883). Annales des Mines **4**: 379.
- Marinov N. M. (1999b). "Detailed chemical kinetic model for high temperature ethanol oxidation." International Journal of Chemical Kinetics **31**(3): 183-220.
- Marshall S. P., Taylor S., Stone C. R., Davies T. J. and Cracknell R. F. (2011k). "Laminar burning velocity measurements of liquid fuels at elevated pressures and temperatures with combustion residuals." Combustion and Flame **158**(10): 1920-1932.

- Martz J. B., Middleton R. J., Lavoie G. A., Babajimopoulos A. and Assanis D. N. (2011). "A computational study and correlation of premixed isooctane-air laminar reaction front properties under spark ignited and spark assisted compression ignition engine conditions." Combustion and Flame **158**(6): 1089-1096.
- Metghalchi M. and Keck J. C. (1982c). "Burning velocities of mixtures of air with methanol, isooctane and indolene at high pressure and temperature." Combustion and Flame **48**: 191-210.
- Michael J. V. and Sutherland J. W. (1988b). "Rate constants for the reactions of hydrogen atom with water and hydroxyl with hydrogen by the flash photolysis-shock tube technique over the temperature range 1246-2297 K." The Journal of Physical Chemistry **92**(13): 3853-3857.
- Miller J. A. and Bowman C. T. (1989b). "Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion." Progress in Energy and Combustion Science **15**(4): 287-338.
- Moréac G., Dagaut P., Roesler J. F. and Cathonnet M. (2006g). "Nitric oxide interactions with hydrocarbon oxidation in a jet-stirred reactor at 10 atm." Combustion and Flame **145**(3): 512-520.
- Müller U. C., Bollig M. and Peters N. (1997c). "Approximations for burning velocities and markstein numbers for lean hydrocarbon and methanol flames." Combustion and Flame **108**(3): 349-356.
- Natarajan V. K., Sick V., Reuss D. L. and Silvas G. (2009h). "Effect of Spark-Ignition on Combustion Periods during Spark-Assisted Compression Ignition." Taylor & Francis: 1187-1206.
- Parlement Européen (2009i) "Directive 2009/28/CE."
- Peters N. (1994b, 03/10/2011). "AbschlUBericht zum Forschungsvorhaben Pe 241/9-2, Turbulente Brenngeschwindigkeit." from <http://www.itv.rwth-aachen.de>.
- Poinsot T. and Veynante D. (2001b). Theoretical and Numerical Combustion, R.T. Edwards.
- Powling J. (1949). Fuel **28**: 25.
- Qureshi N. and Blaschek H. P. (2000e). "Economics of Butanol Fermentation using Hyper-Butanol Producing Clostridium Beijerinckii BA101." Food and Bioproducts Processing **78**(3): 139-144.
- Rice R. W., Sanyal A. K., Eirod A. C. and Bata R. M. (1991). "Exhaust gas emissions of butanol, ethanol, and methanol-gasoline blends." Journal of Engineering for Gas Turbines and Power **113**(3): 377-381.

- Roberts A. F. (1959). "The burning velocities of the alcohols." J. Imp. Coll. Chem. Eng. Soc.: 58-73.
- Ryan III T. W. and Lestz S. S. (1981b). "The laminar burning velocity of isooctane, n-heptane, methanol, methane, and propane at elevated temperature and pressures in the presence of a diluent." SAE(800103): 652-664.
- Sarathy S. M., Thomson M. J., Togbé C., Dagaut P., Halter F. and Mounaim-Rousselle C. (2009j). "An experimental and kinetic modeling study of n-butanol combustion." Combustion and Flame **156**(4): 852-864.
- Schifter I., Diaz L., Rodriguez R., Gómez J. P. and Gonzalez U. (2011m). "Combustion and emissions behavior for ethanol-gasoline blends in a single cylinder engine." Fuel **In Press, Uncorrected Proof**.
- Seery D. J. and Bowman C. T. (1970). "An experimental and analytical study of methane oxidation behind shock waves." Combustion and Flame **14**(1): 37-47.
- Serras-Pereira J., Aleiferis P. G., Richardson D. and Wallace S. (2008f). "Characteristics of Ethanol, Butanol, Iso-Octane and Gasoline Sprays and Combustion from a Multi-Hole Injector in a DISI Engine." SAE(2008-01-1591): 1-17.
- Sivashinsky G. I. (1977b). "Nonlinear analysis of hydrodynamic instability in laminar flames--I. Derivation of basic equations." Acta Astronautica **4**(11-12): 1177-1206.
- Smith J. D. and Sick V. (2007h) "The Prospects of Using Alcohol-Based Fuels in Stratified-Charge Spark-Ignition Engines." SAE, 1-14.
- Szwaja S. and Naber J. D. (2010h). "Combustion of n-butanol in a spark-ignition IC engine." Fuel **89**(7): 1573-1582.
- Tagalian J. and Heywood J. B. (1986a). "Flame initiation in a spark-ignition engine." Combustion and Flame **64**(2): 243-246.
- Tahtouh T., Halter F. and Mounaim-Rousselle C. (2009k). "Measurement of laminar burning speeds and Markstein lengths using a novel methodology." Combustion and Flame **156**(9): 1735-1743.
- Tahtouh T., Halter F., Mounaim-Rousselle C. and Samson E. (2010i). "Experimental Investigation of the Initial Stages of Flame Propagation in a Spark-Ignition Engine: Effects of Fuel." SAE Technical Paper(2010-01-1451).

- Taylor A. B., Moran D. P., Bell A. J., Hodgson N. G., Myburgh I. S. and Botha J. J. (1996b). "Gasoline/Alcohol Blends: Exhaust Emissions, Performance and Burn-rate in a Multi-Valve Production Engine." SAE(961988): 1-18.
- Tham Y. F., Bisseti F. and Chen J. Y. (2008g). "Development of a Highly Reduced Mechanism for Iso-Octane HCCI Combustion With Targeted Search Algorithm." Journal of Engineering for Gas Turbines and Power **130**(4).
- Timonen R. S., Ratajczak E. and Gutman D. (1987a). "Kinetics of the reaction between formyl radicals and atomic hydrogen." The Journal of Physical Chemistry **91**(3): 692-694.
- Timonen R. S., Ratajczak E. and Gutman D. (1988c). "Kinetics of the reactions of the formyl radical with oxygen, nitrogen dioxide, chlorine, and bromine." The Journal of Physical Chemistry **92**(3): 651-655.
- Timonen R. S., Ratajczak E., Gutman D. and Wagner A. F. (1987b). "The addition and dissociation reaction atomic hydrogen + carbon monoxide .dblharw. oxomethyl. 2. Experimental studies and comparison with theory." The Journal of Physical Chemistry **91**(20): 5325-5332.
- Turner D., Xu H., Cracknell R. F., Natarajan V. and Chen X. (2011n). "Combustion performance of bio-ethanol at various blend ratios in a gasoline direct injection engine." Fuel **90**(5): 1999-2006.
- Turns S. (1999c). An Introduction to Combustion: Concepts and Application, McGraw-Hill.
- van Lipzig J. P. J., Nilsson E. J. K., de Goey L. P. H. and Konnov A. A. (2011o). "Laminar burning velocities of n-heptane, iso-octane, ethanol and their binary and tertiary mixtures." Fuel **90**(8): 2773-2781.
- Varde K., Jones A., Knutsen A., Mertz D. and Yu P. (2007i). "Exhaust emissions and energy release rates from a controlled spark ignition engine using ethanol blends." Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part D: Journal of Automobile Engineering **221**(8): 933-941.
- Varea E., Modica V., Vandel A. and Renou B. (2011p). "Measurement of laminar burning velocity and Markstein length relative to fresh gases using a new postprocessing procedure: Application to laminar spherical flames for methane, ethanol and isooctane/air mixtures." Combustion and Flame **In Press, Uncorrected Proof**.
- Veloo P. S. and Egolfopoulos F. N. (2011q). "Flame propagation of butanol isomers/air mixtures." Proceedings of the Combustion Institute **33**(1): 987-993.

- Veloo P. S., Wang Y. L., Egolfopoulos F. N. and Westbrook C. K. (2010j). "A comparative experimental and computational study of methanol, ethanol, and n-butanol flames." Combustion and Flame **157**(10): 1989-2004.
- Wallner T. (2011r). "Correlation Between Speciated Hydrocarbon Emissions and Flame Ionization Detector Response for Gasoline/Alcohol Blends." Journal of Engineering for Gas Turbines and Power **133**.
- Wallner T. and Frazee R. (2010k). "Study of regulated and non-regulated emissions from combustion of gasoline, alcohol fuels and their blends in a DI-SI engine." SAE(2010-01-1571).
- Wallner T., Miers S. A. and McConnell S. (2009l). "A comparison of ethanol and butanol as oxygenates using a direct-injection, spark-ignition engine." Journal of Engineering for Gas Turbines and Power **131**(3): 032802 (032809 pp.).
- Warnatz J. (1984d). Critical survey of elementary reaction rate coefficients in the C/H/O system. Combustion Chemistry. W. C. G. Jr. New-York, Springer.
- Yacoub Y., Bata R. and Gautam M. (1998f) "The performance and emission characteristics of C1–C5 alcohol–gasoline blends with matched oxygen content in a single-cylinder spark ignition engine." Proc Instn Mech Engrs **212 (Part A)**, 363-379.
- Yu G., Law C. K. and Wu C. K. (1986b). "Laminar flame speeds of hydrocarbon + air mixtures with hydrogen addition." Combustion and Flame **63**(3): 339-347.
- Zervas E., Montagne X. and Lahaye J. (2002e) "Emission of alcohols and carbonyl compounds from a spark ignition engine. Influence of fuel and air/fuel equivalence ratio." Environmental Science and Technology **36**, 2414-2421.
- Zervas E., Montagne X. and Lahaye J. (2003d) "Emissions of regulated pollutants from a spark ignition engine. Influence of fuel and air/fuel equivalence ratio." Environmental Science and Technology **37**, 3232-3238.
- Zhang H. R., Eddings E. G., Sarofim A. F. and Westbrook C. K. (2009m). "Fuel dependence of benzene pathways." Proceedings of the Combustion Institute **32**(1): 377-385.

**Guillaume BROUSTAIL**

## **Potentiel de l'utilisation des mélanges hydrocarbures/alcools dans des moteurs à allumage commandé**

Depuis plusieurs années, la diminution des réserves de pétrole incite les différents pays à accroître leur indépendance énergétique. De plus, diminuer l'impact environnemental de la voiture est devenu l'une des priorités de notre société. En ce sens, les normes Européennes anti-pollution sont devenues plus strictes, tandis que certains polluants sont pointés du doigt pour avoir un impact néfaste sur la santé et l'environnement. Pour répondre à cette double problématique, l'utilisation de biocarburants de type alcools dans les moteurs à allumage commandé est l'une des voies envisagées. Ce virage a déjà été entrepris à petite échelle par l'Union Européenne qui a tout d'abord autorisé l'ajout de 5%, puis de 10% d'éthanol dans l'essence. En plus de l'éthanol déjà commercialisé, le Biobutanol, biocarburant de 2<sup>nd</sup>e génération, apparaît comme un candidat à fort potentiel pour une utilisation dans les moteurs à allumage commandé.

L'objectif de ce travail de thèse est d'étudier le potentiel de l'utilisation de mélanges iso-octane/butanol dans les moteurs à allumage commandé, en termes de performances et d'émissions polluantes. De plus, ces résultats sont comparés à ceux de mélanges iso-octane/éthanol. Le dégagement de chaleur dans un moteur à allumage commandé est en partie piloté par la vitesse de combustion laminaire. Cette caractéristique a été étudiée de manière expérimentale et numérique pour différentes conditions initiales (pression et richesse) dans une enceinte à volume constant. Puis, une étude sur les premières étapes de la propagation de la combustion a été réalisée dans un moteur monocylindre à accès optique. Ces résultats en moteur ont été corrélés avec les informations laminaires. Enfin, les émissions de polluants réglementés et non-réglementés, ainsi que les performances ont été étudiées dans un moteur monocylindre à allumage commandé. Une baisse de la plupart de ces émissions a été observée avec l'ajout des deux alcools.

Mots clés : moteur à allumage commandé, éthanol; butanol, émissions polluantes, vitesse de combustion laminaire

## **Potential of hydrocarbons/alcohols blends use in spark-ignition engines**

For the past few years, the oil stock decrease encourages the different countries to increase their energy independence. Moreover, reducing the environmental impact of transportation became one of the priorities of our society. In this way, European emissions standards are stricter while several pollutants have been identified to have a negative impact on health and the environment. To answer this double problem, the use of alcohols biofuels in spark-ignition engines is one of the promising ways. The European Union has already taken a small step in that direction by allowing a maximum of 10% of ethanol into gasoline. As well as ethanol is already marketed, Biobutanol, a 2<sup>nd</sup> generation biofuel, appears as a serious candidate with a strong potential for a spark-ignition engines use.

The objective of this dissertation is to study the potential of the iso-octane/butanol blends use in spark-ignition engines, in terms of performance and pollutants emissions. Moreover, these results are compared to iso-octane/ethanol blends. The heat release in spark-ignition engine is piloted for a part by laminar burning velocity. This characteristic was studied experimentally and numerically for different initial conditions (pressure and equivalence ratio) in a constant volume bomb. Then, the early flame kernel growth was studied in a spark-ignition single cylinder engine equipped with optical accesses. Those results were correlated with the results on the laminar burning velocity. Finally, regulated and non-regulated pollutants emissions and engine performance were investigated in a spark-ignition single cylinder engine. A decrease of most pollutant emissions was observed with both alcohols addition.

Keywords : Spark-ignition engine, ethanol, butanol, pollutants emissions, laminar burning velocity



8, rue Léonard de Vinci 1100, rue Notre-Dame Ouest  
45072 Orléans Cedex 2 Montréal (Québec) H3C 1K3