



Modélisation hybride de la chimie pour la simulation numérique de la combustion

Bastien Duboc

► To cite this version:

Bastien Duboc. Modélisation hybride de la chimie pour la simulation numérique de la combustion. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Normandie Université, 2017. Français. NNT : 2017NORMIR23 . tel-01764917

HAL Id: tel-01764917

<https://theses.hal.science/tel-01764917>

Submitted on 12 Apr 2018

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.



Normandie Université

THÈSE

pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité : Mécanique des Fluides

Préparée à l'INSA de Rouen

Modélisation hybride de la chimie pour la simulation numérique de la combustion

présentée et soutenue par

Bastien DUBOC

**Thèse soutenue publiquement le 30 Novembre 2017
devant le jury composé de**

Guillaume DAYMA	Professeur, ICARE, Université d'Orléans	Rapporteur
Amsini SADIKI	Professeur, TU Darmstadt (Allemagne)	Rapporteur
Frédérique BATTIN-LECLERC	Directrice de Recherche, LRGP, CNRS	Examinatrice
Perrine PEPIOT	Professeure, Cornell University (USA)	Examinatrice
Ronan VICQUELIN	Maître de Conférences, EM2C, Ecole Centrale Paris	Examinateur
Pascale DOMINGO	Directrice de Recherche, CORIA, CNRS	Directrice de thèse
Guillaume RIBERT	Maître de Conférences, CORIA, INSA de Rouen Normandie	Co-directeur de thèse

■ Thèse dirigée par Pascale DOMINGO et Guillaume RIBERT, laboratoire CORIA (UMR 6614 CNRS)

Résumé : Modélisation hybride de la chimie pour la simulation numérique de la combustion

Malgré l'augmentation constante des ressources informatiques dédiées au calcul scientifique, simuler des écoulements réactifs mettant en jeu une chimie complexe reste aujourd'hui encore un véritable challenge. L'objectif de cette thèse est le développement de la méthode Hybrid Transported-Tabulated Chemistry (HTTC), destinée aux simulations DNS/LES de flammes avec des mécanismes cinétiques détaillés, en offrant un temps de calcul acceptable. Cette nouvelle approche consiste à transporter les espèces majoritaires de l'écoulement, tandis que les espèces minoritaires sont extraites d'une table chimique. La méthode HTTC a été implémentée dans un code DNS/LES et validée sur des flammes 1D de méthane et de kérosène, mettant en évidence une réduction extrêmement importante du temps de calcul, comparé aux solveurs classiques de chimie détaillée. HTTC a ensuite été mis en œuvre avec succès sur des flammes triples de méthane en présence de forts gradients de fraction de mélange. L'impact des méthodes choisies pour prolonger la table chimique et pour calculer les variables de contrôle, utilisées pour paramétrer la table, a été étudiée avec une attention particulière. Un très bon accord a été trouvé avec les résultats de référence, obtenus avec un solveur de chimie détaillée.

Mots-clés : simulation numérique de la combustion, chimie détaillée, chimie tabulée, modélisation hybride de la chimie, flammes triples

Abstract : Hybrid Transported-Tabulated Chemistry for numerical simulation of combustion

Even if significant progress is being made to improve the power of high-performance computers, the numerical simulation of reactive flows involving complex chemistry is still a challenging task. The objective of this work is the development of the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry method (HTTC), designed for the DNS/LES simulations of flames with detailed kinetic mechanisms, with an acceptable cost. This novel approach combines the transport of the main species in the flow with the tabulation of the radical species. It has been implemented in a DNS/LES code and validated on 1D methane and kerosene flames. The cost of the simulations has been considerably decreased, compared to classic detailed chemistry solvers. Then, simulations of methane edge flames, featuring large gradients of mixture fraction, have been performed with HTTC. In particular, the impact of the methods used to extend the chemical tables and to compute the control variables have been analyzed in details. A very good agreement has been found by comparison with detailed chemistry.

Keywords : numerical simulation of combustion, detailed chemistry, tabulated chemistry, hybrid modeling of chemistry, edge flames

Remerciements

*« Je suis un serviteur du Feu Secret, détenteur de la flamme
d'Anor. Le feu sombre ne vous servira à rien, flamme d'Udûn.
Repartez dans l'ombre ! Vous... ne passerez... pas ! »*

Gandalf le Gris, mage et docteur en combustion,
au Balrog de Morgoth

Les quelques mots qui suivent sont pour moi l'occasion de remercier toutes les personnes qui ont contribué à l'aboutissement de cette thèse.

Ces travaux ont été financés par la région Normandie, et se sont déroulés au laboratoire CORIA. Je remercie ses directeurs successifs, Mourad Boukhalfa et Armelle Cessou, ainsi que Valérie Thieury et Isabelle Lebon, pour m'avoir permis d'effectuer ma thèse dans les meilleures conditions possibles.

Je remercie également Guillaume Dayma et Amsini Sadiki, pour le temps et l'attention qu'ils ont consacré à la revue complète de ce manuscrit, mais aussi Frédérique Battin-Leclerc, Perrine Pépiot et Ronan Vicquelin pour avoir accepté de faire partie de mon jury et d'avoir montré de l'intérêt pour mes travaux, en y apportant leur expertise.

Je souhaite maintenant exprimer toute ma reconnaissance et ma gratitude à mes directeurs de thèse, Pascale Domingo et Guillaume Ribert. Cette thèse n'aurait pas pu aboutir sans votre expérience et vos conseils avisés sur mes travaux, mais je pense que c'est surtout votre énergie et votre soutien permanent tout au long de ces 4 ans qui m'ont permis d'en venir à bout... Merci de m'avoir fait confiance pendant toutes ces années, avant même que j'ai commencé cette thèse, quand je n'étais qu'un jeune étudiant/stagiaire qui ignorait alors tout des flammes, qu'elles soient simples, doubles ou triples. Cette thèse a été une excellente expérience grâce à vous.

Que serait une thèse en simulation numérique sans le support du Génie LogicielTM ? Je remercie Ghislain Lartigue, Saint Patron des Compileurs et des Disques Durs, Détenteur du Compte Admin Sacré, pour son aide efficace et sa disponibilité tout au long de cette thèse. Merci aux "vieux" docteurs, Ben, Xavier, Lola, Lisa, de m'avoir bien accueilli quand je n'étais encore qu'un jeune thésard naïf. En parlant de vieux docteurs, je continue en remerciant Pierre, premier consommateur mondial de crème fraîche d'Isigny AOP, et créateur des cérémonies du RHUM¹. Grâce à toi je sais maintenant que Caen

1. Acronyme toujours à définir.

est la plus belle ville du monde², et qu’une embuscade peut en fait être agréable.

Je remercie Arthur pour ces trois années passées en coloc’, qui auront été l’occasion de faire mourir ce pauvre Isaac des centaines de fois et de consommer des quantités de beurre, de lardons et de rillettes presque dangereuses pour la santé. Merci d’avoir pris le temps d’enrichir ma culture musicale (et comme disait Yoda, “cry me a river, oh”) entre deux lignes de code et une séance à “la salle”. Je remercie maintenant Eurielle, Dorian (doublechapochinoi) et Nicolas (samebutecettebouse), avec qui j’ai vécu des expériences inoubliables pendant cette thèse. Je garderai un super souvenir de la fois où on a mangé des kurtoskalacs de porc, cuisinés au bois sur une véritable bilig hongroise, en pleine randonnée au milieu du Center Parc de Montpellier à dos de crocodile gonflable. Ou la fois où on a joué du Hans Zimmer à la guitare déguisés en fleur, tout en faisant des sciences. Ça ne s’est pas vraiment passé comme ça, mais l’idée est là.

A ces souvenirs viennent s’ajouter ceux vécus avec mes colocataires du “bureau du haut”. La tournée des kebabs européens et les chambres d’hôtel avec ce cher Umut, toutes les bières bues ensemble dans des verres toujours plus gros, ou encore les rappeurs aux punchlines acérées... Mais aussi les discussions toujours plus animées³ avec son acolyte Loïc (a.k.a Juste). Les improvisations interminables de new stoner post-sidérurgique avec JB et Kévin... Et tous les “artistes” improbables que ces deux là m’ont fait découvrir et qui me hantent encore⁴... Les caïpi’ inimitables d’Alex, les débats avec Andréa sur des styles de metal non-homologués voire illégaux... J’en profite pour souhaiter une bonne continuation aux (presque) docteurs du “bureau du bas” : Patricia, Hakim, Lancelot, Yann, Nicolas, Francesco.

Je remercie également mes collègues d’Adwen, Paul, Laurent, Norbert, Panos et Félix, pour avoir été compréhensifs et pour m’avoir soutenu lorsque j’achevais la rédaction de ce manuscrit entre deux simulations d’éoliennes non-réactives (dommage).

Merci aussi à Thomas, éminent représentant des Gueux, d’avoir assisté à ma soutenance et de (ne pas) s’être trop moqué de mes flammes 1D. Enfin je remercie mes parents pour leur présence et leurs encouragements, et Charlotte pour m’avoir soutenu dans les moments difficiles rencontrés pendant cette thèse.

2. Voir conditions page 248.

3. Quoi ?

4. ...au boulot ...au boulot

Table des Matières

Nomenclature	5
1 Introduction	9
1.1 Contexte industriel	9
1.1.1 Combustion et production d'énergie	9
1.1.2 Combustion et environnement	13
1.1.3 Combustion et simulation numérique	15
1.2 Contexte scientifique	20
1.2.1 Rôle des mécanismes cinétiques détaillés dans la combustion	20
1.2.2 Traitement de la chimie dans les codes DNS/LES	21
1.2.2.1 Difficultés inhérentes à l'utilisation de mécanismes cinétiques détaillés dans un code DNS/LES	21
1.2.2.2 Méthodes numériques pour le transport d'un mécanisme détaillé ou squelettique	22
1.2.2.3 Réduction des mécanismes	25
1.2.2.4 Méthodes de tabulation	28
1.3 Objectifs de la thèse	34
1.4 Plan du manuscrit	36
2 Équations de l'aérothermochimie	39
2.1 Description d'un mélange multi-espèces	39
2.1.1 Concentrations, fractions massiques et molaires	39
2.1.2 Richesse et fraction de mélange	40
2.2 Equations de Navier-Stokes	41
2.2.1 Conservation de la quantité de mouvement	41
2.2.2 Conservation de la masse et des espèces	42
2.2.3 Conservation de l'énergie	42
2.3 Modélisation des phénomènes de diffusion	44
2.3.1 Nombres caractéristiques	44
2.3.2 Approche <i>Mixture-Averaged</i>	45
2.3.3 Approche simplifiée	46
2.3.4 Importance de la modélisation de la diffusion des espèces	47
2.4 Equations d'état	48

3	Modélisation de la chimie	51
3.1	Cinétique chimique	52
3.1.1	Combustion de combustibles lourds	52
3.1.1.1	Composition du kérosène	52
3.1.1.2	Structure de flamme	54
3.1.2	Chimie des NO_x	55
3.1.2.1	NO_x thermiques	55
3.1.2.2	NO_x “précoces”	56
3.1.2.3	NO_x issus de l’azote du combustible	56
3.1.2.4	Profils de fractions massiques des NO_x	57
3.1.3	Mécanismes cinétiques utilisés dans cette étude	57
3.2	Calcul des termes source des espèces	61
3.2.1	Taux de réaction et constantes de vitesse	63
3.2.2	Réactions <i>three-body</i>	64
3.2.3	Réactions <i>fall-off</i>	64
3.3	Structures canoniques de flammes	65
3.3.1	Réacteurs parfaitement prémélangés et auto-allumage	66
3.3.2	Flammes de pré-mélange	66
3.3.3	Flammes de diffusion	69
3.3.4	Flammes partiellement prémélangées	69
3.3.5	Indice de flamme	70
3.4	Modélisation dans SiTCom-B	72
3.4.1	Caractéristiques principales du code	72
3.4.1.1	Généralités	72
3.4.1.2	Méthode des volumes finis	73
3.4.1.3	Avancement temporel explicite	74
3.4.2	Solveur de chimie transportée	74
3.4.2.1	Lecture et interprétation du mécanisme cinétique	74
3.4.2.2	Equations de transport et calcul des propriétés thermodynamiques . .	76
3.4.2.3	Calcul du pas de temps	76
3.4.3	Solveur de chimie tabulée FPI	78
3.4.3.1	Equations de transport	78
3.4.3.2	Calcul du pas de temps	79
3.4.3.3	Génération de la table	79
3.4.3.4	Calcul de la température	80
3.4.3.5	Prise en compte des effets de diffusion différentielle	84
3.4.4	Optimisation du code	90
3.4.4.1	Analyse des performances de la version non-optimisée du solveur multi- espèces transportées	91
3.4.4.2	Optimisation du calcul des variables thermodynamiques et des constantes de vitesse des réactions chimiques	93
3.4.4.3	Optimisations liées au choix du compilateur	100
3.4.4.4	Analyse des performances parallèles	101

4	Hybrid Transported-Tabulated Chemistry	105
4.1	Description of the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry approach	106
4.1.1	Global principle	106
4.1.2	“Fast” formulation of the HTTC solver	108
4.1.3	Overview of the HTTC solver in SiTCom-B	111
4.2	Self-similarity in hydrocarbon flames	114
4.2.1	Radical species in methane flames	114
4.2.2	Kerosene flames	119
4.2.2.1	Multi-zone self-similarity	119
4.2.2.2	Species lumping	120
4.2.3	Self-similarity for very large kinetic mechanisms	123
4.2.4	The particular case of NO _x	124
4.3	Table building	126
4.3.1	Flame database generation	127
4.3.1.1	Building procedure	127
4.3.1.2	Flame meshing	127
4.3.2	Choice of the tabulated species	128
4.3.2.1	Mathematical criteria	128
4.3.2.2	The particular case of NO _x	129
4.3.3	Choice of the control parameters	130
4.3.4	Prolongation of the table out of the flammability limits	131
4.3.4.1	Computation of 1D flames outside the flammability limits	134
4.3.4.2	Extrapolation of the 1D premixed flames	136
4.3.5	Automated tool for the generation of tables	139
4.4	Simulation of one-dimensional methane and kerosene flames	144
4.4.1	Presentation of the study and numerical parameters	144
4.4.2	Computation of stoichiometric flames	145
4.4.2.1	Validation towards fully-detailed chemistry	145
4.4.2.2	Computation using tables built with a single flame	147
4.4.2.3	Computational efficiency	149
4.4.3	Self-similarity errors	154
4.4.4	Mass conservation	157
4.4.5	NO _x computation with HTTC	162
4.5	Conclusion	163
5	Simulation of methane-air edge flames	169
5.1	Introduction	169
5.1.1	Edge flames	169
5.1.2	Goals of this chapter	171
5.2	Presentation of the simulation setup	173
5.2.1	Computational domain	173
5.2.2	Configuration of the solvers	174
5.2.3	Implementation of the simulations	174
5.3	Flame structure analysis with detailed chemistry (FTC)	175
5.4	Edge flame simulations with FPI	182
5.5	Edge flame simulations with HTTC	185
5.5.1	Sensitivity to the table prolongation method	185

5.5.1.1	Preliminary simulations	185
5.5.1.2	Comparison of the different prolongation methods with detailed chemistry	189
5.5.2	Influence of the control variables	193
5.5.2.1	Progress variable	193
5.5.2.2	Mixture fraction	197
5.5.3	Self-similarity of radical species in triple flames	201
5.6	Conclusion	201
6	Conclusion and perspectives	205
6.1	Conclusions	205
6.1.1	Purpose of HTTC and objectives of this Ph.D. thesis	205
6.1.2	Summary of the work and the results of this Ph.D. thesis	206
6.2	Perspectives	209
A	Mesh refinement study	213
B	Additional data for Chapter 5	217
C	Correction of the local value of the mixture fraction	223
	Bibliographie	240

Nomenclature

Les principaux acronymes, nombres sans dimensions, nom de variables et espèces chimiques utilisés dans ce manuscrit sont détaillés ci-dessous. Les noms n'apparaissant pas dans cette nomenclature sont définis localement dans le texte, et peuvent changer de signification d'une section à l'autre.

Acronymes

CFD	Computational Fluid Dynamics
CFL	Courant Friedrichs Lewy
CINES	Centre Informatique National de l'Enseignement Supérieur
CORIA	COmplexe de Recherche Interprofessionnel en Aerothermochimie
CPU	Central Processing Unit
DNS	Direct Numerical Simulation
FLOP	FLoating-point OPeration
FLOPS	FLoating-point OPeration per Second
FPI	Flame Prolongation of ILDM
FTC	Fully-Transported Chemistry
GNU	GNU is Not Unix
GPU	Graphics Processing Unit
HPC	High Performance Computing
HTTC	Hybrid Transported-Tabulated Chemistry
IDRIS	Institut du Développement et des Ressources en Informatique Scientifique
ILDM	Intrinsic Low-Dimensional Manifold
LES	Large Eddy Simulation
MPI	Message Passing Interface
NSCBC	Navier-Stokes Characteristic Boundary Condition
RAM	Random Access Memory
RANS	Reynolds-Averaged Navier-Stokes
REGATH	REal GAs THERmodynamics
RK	Runge-Kutta
SiTCom-B	Simulation of Turbulent Combustion with Billion of points

Lettres romaines

c_p	Capacité calorifique massique à pression constante
c_v	Capacité calorifique massique à volume constant
D_k	Coefficient de diffusion de l'espèce k dans le mélange

E	Energie totale non-chimique massique
e_c	Energie cinétique massique
e_s	Energie sensible massique
e_t	Energie totale chimique massique
h	Enthalpie massique
k_b	Constante de vitesse en sens indirect (<i>backward</i>)
k_f	Constante de vitesse en sens direct (<i>forward</i>)
N_{sp}	Nombre total d'espèces chimiques présentes dans le mécanisme cinétique considéré
N_r	Nombre total de réactions présentes dans le mécanisme cinétique considéré
P	Pression
R	Constante des gaz parfaits
r	Constante des gaz parfaits réduite $r = R/W$
RE	Efficacité réduite utilisée pour mesurer le coût CPU d'une simulation
s	Entropie massique
S_L	Vitesse de flamme laminaire
T	Température
t	Temps
u ou U	Vecteur vitesse
V^c	Vitesse de correction
W	Masse molaire du mélange
W_k	Masse molaire de l'espèce k
x_i	Position spatiale dans la direction i
X_k	Fraction molaire de l'espèce k
Y_k^+	Fraction massique réduite de l'espèce k
Y_c	Variable d'avancement
Y_k	Fraction massique de l'espèce k
$Y_{c,k}^+$	Variable d'avancement réduite associée à l'espèce k
Z	Fraction de mélange

Lettres grecques

δ_T	Epaisseur thermique de la flamme
$\dot{\omega}_k$	Terme source de l'espèce k
λ	Conductivité thermique
μ	Viscosité dynamique
ν	Viscosité cinématique
ϕ	Richesse du mélange
ρ	Masse volumique

Nombres sans dimension

Le_k	Nombre de Lewis de l'espèce k
Pr	Nombre de Prandtl
Re	Nombre de Reynolds
Sc	Nombre de Schmidt

Indices

<i>b</i>	<i>burnt</i>
<i>L</i>	<i>lean</i>
<i>M</i>	Indique une espèce transportée dans le cadre de la méthode HTTC
<i>m</i>	Indique une espèce tabulée dans le cadre de la méthode HTTC
<i>R</i>	<i>rich</i>
<i>st</i>	Stœchiométrie
<i>u</i>	<i>unburnt</i>

Espèces chimiques

C_2H_2	Acétylène
C_2H_4	Ethylène
C_2H_6	Ethane
CH	Radical methyldyne
CH_4	Méthane
CO	Monoxyde de carbone
CO_2	Dioxyde de carbone
H	Hydrogène
H_2	Dihydrogène
H_2O	Eau
HO_2	Radical hydroperoxyl
N	Azote
N_2	Diazote
N_2O	Protoxyde d'azote
$NC_{10}H_{22}$	n-décane
NO	Monoxyde d'azote
NO_2	Dioxyde d'azote
O	Oxygène
O_2	Dioxygène
OH	Radical hydroxyl

Sommaire

1.1	Contexte industriel	9
1.1.1	Combustion et production d'énergie	9
1.1.2	Combustion et environnement	13
1.1.3	Combustion et simulation numérique	15
1.2	Contexte scientifique	20
1.2.1	Rôle des mécanismes cinétiques détaillés dans la combustion	20
1.2.2	Traitement de la chimie dans les codes DNS/LES	21
1.2.2.1	Difficultés inhérentes à l'utilisation de mécanismes cinétiques détaillés dans un code DNS/LES	21
1.2.2.2	Méthodes numériques pour le transport d'un mécanisme détaillé ou squelettique	22
1.2.2.3	Réduction des mécanismes	25
1.2.2.4	Méthodes de tabulation	28
1.3	Objectifs de la thèse	34
1.4	Plan du manuscrit	36

Ce chapitre d'introduction commence par rappeler les enjeux économiques et environnementaux liés à la combustion, puis met brièvement en avant l'importance majeure de la simulation numérique dans la conception des systèmes qui utilisent la combustion. Dans un second temps, les difficultés inhérentes à la modélisation de la chimie lors de la simulation numérique des écoulements réactifs sont abordées. Un aperçu des modèles qui existent aujourd'hui pour faire face à ces difficultés est alors proposé, afin d'y situer la méthode HTTC (Hybrid Transported Tabulated Chemistry) développée au cours de cette thèse. Enfin, les objectifs de cette thèse et le plan de ce manuscrit sont détaillés.

1.1 Contexte industriel

1.1.1 Combustion et production d'énergie

Depuis plusieurs décennies, on assiste à un développement technologique constant. En conséquence, la quantité d'énergie produite et consommée à l'échelle mondiale ne cesse d'augmenter. Au cours du temps, les méthodes de production d'énergie se sont diversifiées, et reposent aujourd'hui sur différents principes de fonctionnement. Historiquement, la combustion a été le premier moyen de production, utilisé aussi bien pour la production d'électricité que dans le domaine des transports. Dès le 19^{ème} siècle, l'invention de la machine à vapeur, alimentée avec du charbon, a permis la propulsion des premières automobiles et l'exploitation des premières centrales électriques. Plus tard, dans les années 1950, les premiers réacteurs nucléaires ont fait leur apparition aux Etats-Unis, en Europe, et dans l'Union soviétique, permettant une production d'électricité en grandes quantités, en transformant la chaleur dégagée par la fission d'atomes lourds radioactifs. L'énergie nucléaire a ensuite pris son essor entre 1960 et 1980, période achevée quelques années plus tard par la catastrophe de Tchernobyl. Cet accident a bouleversé

l'opinion publique et a suscité d'importants débats politiques, qui ont ralenti la construction de nouvelles centrales. D'un point de vue technique, les centrales nucléaires présentent de plus l'inconvénient de produire des déchets radioactifs extrêmement difficiles à traiter. Plus récemment, la préservation de l'environnement est devenue un critère majeur à prendre en compte dans le processus de production d'énergie. De nombreuses technologies, visant à exploiter les énergies dites "renouvelables" (éolienne, solaire, géothermique et hydraulique), quasiment inépuisables, ont alors émergé. Cependant, ces installations génèrent des quantités d'électricité relativement faibles (notamment dans le cas des panneaux solaires et des centrales géothermiques), et peuvent être délicates à mettre en oeuvre et à maintenir (particulièrement pour les hydroliennes qui exploitent les courants marins, et qui sont donc exposées à l'érosion et la corrosion), ce qui se traduit le plus souvent par un coût de production élevé. Par ailleurs, certaines de ces technologies en sont encore au stade du développement et ne sont pas encore prêtes à rejoindre le marché de l'industrie énergétique.

Ainsi, la combustion reste la source d'énergie privilégiée pour un grand nombre de dispositifs de puissance élevée (quelques dizaines de kilowatts à plusieurs centaines de mégawatts). Pour la production "statique" (électricité et chauffage), la combustion semble toujours offrir le meilleur compromis entre facilité d'accès et coût du combustible, coût d'exploitation, sécurité de fonctionnement, et modération des émissions de polluants. Par rapport aux autres procédés, la combustion a l'avantage supplémentaire de bénéficier d'une maturité technologique, due à une utilisation plus que centenaire.

Dans le domaine des transports, la combustion reste irremplaçable, particulièrement dans le secteur aéronautique. En effet, même si le remplacement des automobiles actuelles par des véhicules entièrement électriques est envisageable d'ici quelques décennies, l'aviation civile à motorisation électrique est toujours inaccessible. La densité énergétique élevée des hydrocarbures liquides permet la construction de moteurs compacts et puissants, qui fonctionnent avec une autonomie importante, et qui sont encore loin d'être égalés par des technologies alternatives. A titre d'exemple, *Solar Impulse* (Fig. 1.1) est à ce jour le seul avion électrique habité, capable d'effectuer des vols sur des longues distances, à haute altitude, de jour comme de nuit. D'une envergure comparable à celle d'un Airbus A380 (72 mètres), cet avion, équipé de batteries et de panneau solaires, permet de faire voyager un unique passager à une vitesse d'environ 80 km/h. Ces performances remarquables sont toutefois à comparer à celle des avions de lignes actuels, qui peuvent transporter plusieurs centaines de passagers à des vitesses proches de 1000 km/h.

Le champ d'application de la combustion pourrait également être élargi aux applications de faible puissance (de l'ordre de la dizaine de watts), afin de bénéficier des fortes densités énergétiques des carburants hydrocarbonés. Des chambres de combustion de quelques cm^3 (Fig. 1.2), couplées à des micro-turbines, pourraient alors alimenter en électricité des ordinateurs ou des téléphones portables, avec une autonomie supérieure à celle des batteries, sans perte de performances au cours de l'utilisation du dispositif, et avec la possibilité de recharger instantanément sans source d'électricité à proximité.

De ce fait, environ 80% des besoins énergétiques mondiaux sont, encore aujourd'hui, pourvus par la combustion de combustibles fossiles, qui sont en grande majorité des hydrocarbures : charbon, pétrole et gaz (Fig. 1.3). Ces sources d'énergie ne sont pas renouvelables car elles demandent des millions d'années pour se constituer, et sont consommées beaucoup plus vite que le temps nécessaire pour recréer des réserves. La figure 1.4 montre bien que cette dépendance est forte, et implique la quasi-totalité de la surface du globe. On peut toutefois noter quelques exceptions, comme la Norvège, le Canada et le Brésil qui exploitent fortement les énergies renouvelables, ou encore la France, un des plus gros producteurs d'énergie nucléaire du monde, avec une part de 73% de la production totale nationale d'électricité en 2013 (source : EDF [55]).



Figure 1.1 – L'avion électrique solaire *Solar Impulse*. Source : www.solarimpulse.com

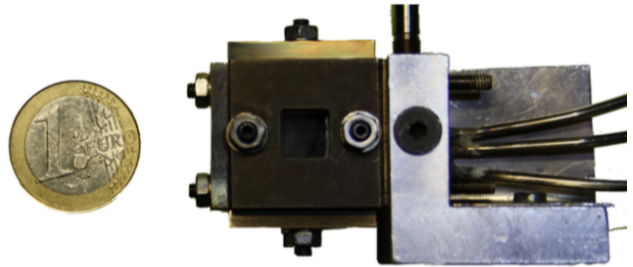


Figure 1.2 – Chambre de combustion centimétrique expérimentale [130] (photographie extraite de la thèse de P. Bénard [11])

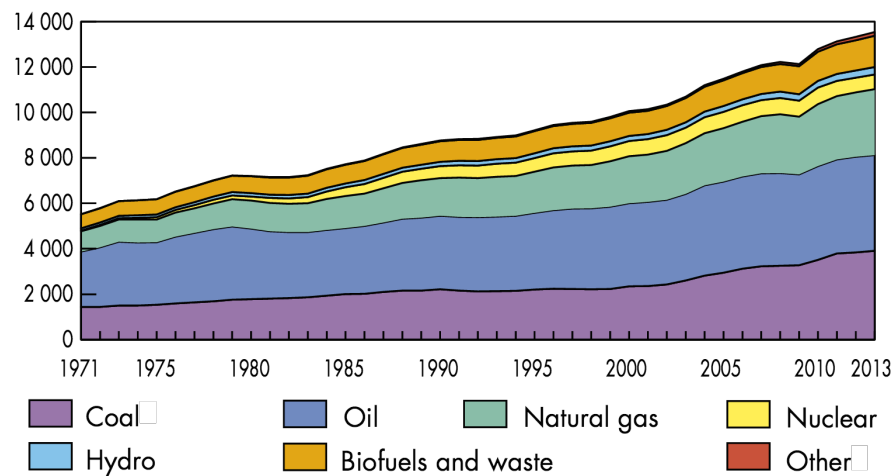


Figure 1.3 – Evolution de la production mondiale d'énergie au cours des dernières décennies, selon le mode de production, exprimée en millions de tonnes d'équivalent pétrole.
Source : Rapport de 2015 de l'*International Energy Agency* [4].

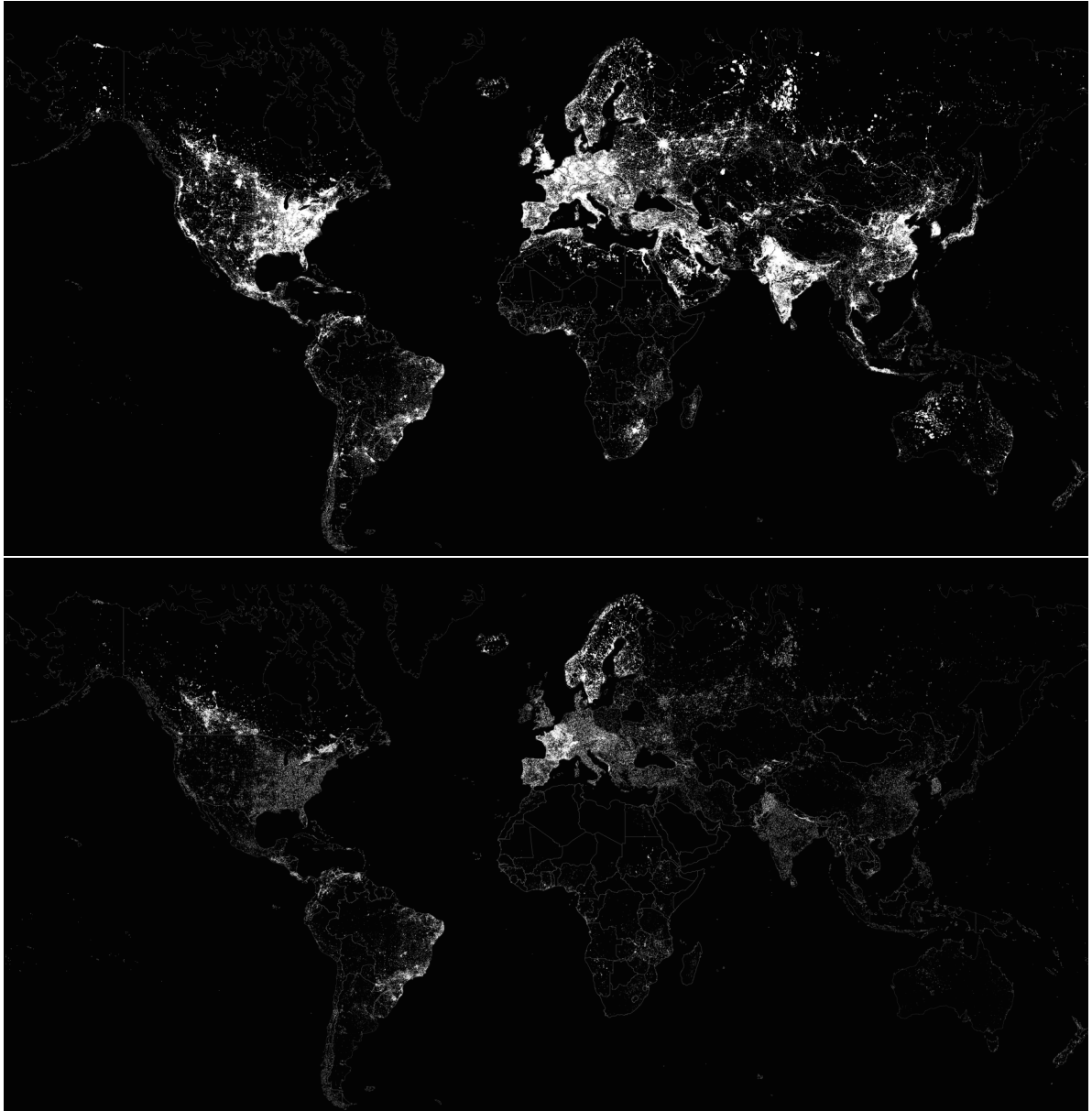


Figure 1.4 – Carte du monde colorée en fonction de la production d'énergie (une forte densité de points blancs indique une production élevée). La carte du haut inclut tous les modes de production d'énergie (fossile, nucléaire et renouvelable), tandis que la production énergétique générée par les énergies fossiles n'est pas prise en compte dans la carte du bas.

Source : www.gocompare.com/energy/what-powers-the-world, basé sur des données de 2013 provenant de l'*International Energy Agency* (www.iea.org/statistics/statisticssearch).

1.1.2 Combustion et environnement

Pour répondre à la demande énergétique de la planète, une quantité colossale d'hydrocarbures est consommée quotidiennement, ce qui entraîne un épuisement des ressources fossiles d'une part et une dégradation de l'environnement d'autre part. Cette dégradation, due à des rejets dans l'atmosphère de gaz issus de la combustion, prend deux formes différentes :

- *contribution au réchauffement climatique*, du fait de l'émission en quantités de plus en plus grandes de gaz à effet de serre, dont font partie le dioxyde de carbone CO_2 (Fig. 1.5), et d'autres composés, émis en plus faibles quantités mais dont le pouvoir de réchauffement global¹ est plus important (quelques-uns d'entre eux sont réunis dans le tableau 1.1).
- *émissions de substances polluantes*, nocives pour l'organisme humain et pour l'écosystème. Ces substances sont nombreuses. Leur concentration dans les produits de combustion et leurs effets sur l'environnement sont variables.

Le monoxyde de carbone CO , essentiellement issu d'une combustion incomplète pouvant avoir lieu en régime riche, est un polluant toxique et particulièrement dangereux lorsqu'il est émis dans un milieu confiné. Ce gaz, inodore et incolore, peut conduire à des lésions léthales des systèmes cardiovasculaire et neurologique, sans symptômes préalables qui pourraient avertir la victime.

Les oxydes d'azote NO_x constituent une famille de polluants également très surveillée par les organismes sanitaires et de protection de l'environnement. Ils résultent de la dégradation du diazote contenu dans l'air. Les principaux NO_x produits par la combustion sont le monoxyde d'azote NO et le dioxyde d'azote NO_2 . Ces espèces chimiques affectent le système respiratoire humain, et sont en partie responsables des pluies acides, ainsi que de la destruction de l'ozone atmosphérique, qui joue un rôle essentiel dans la protection de la Terre contre le rayonnement solaire ultra-violet. L'espèce N_2O , qui est également produite en faibles quantités, est un puissant gaz à effet de serre (Tab. 1.1).

Les oxydes de soufre SO_x proviennent quant à eux de la réaction du soufre contenu dans le combustible avec l'oxygène. Le soufre est une espèce indésirable qui peut apparaître dans les carburants lors du raffinage. Les quantités de SO_x émises aujourd'hui sont très faibles, grâce à la mise en place de normes imposant la distribution de carburants automobiles et aéronautiques dits "sans soufre".

Enfin, on citera les hydrocarbures imbrûlés (que l'on notera HC par la suite), ainsi que les suies (particules fines essentiellement composées de carbone), polluants qui proviennent généralement d'une combustion incomplète en régime riche.

Des données recueillies par le Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique (CITEPA) révèlent que, malgré une baisse constante des émissions depuis 1980, les quantités de gaz à effet de serre et de polluants émises en France sont encore considérables (Fig. 1.6). Notons que ces données ne sont pas représentatives du reste du monde. En particulier, la part des émissions liées à la production d'électricité est très faible, car cette dernière se fait principalement par voie nucléaire. Le secteur des transports (qui regroupe les transports automobile, aérien et maritime) représente une part importante dans les émissions de polluants, notamment en ce qui concerne les NO_x .

Pour tenter de limiter les émissions d'origine automobile, la norme dite "EURO" a été mise en place dans l'Union Européenne en 1993. Elle impose aux constructeurs automobiles les quantités maximales de monoxyde de carbone, d'hydrocarbures imbrûlés, de NO_x et de particules que peuvent émettre les

1. L'agence de protection de l'environnement des Etats-Unis (*Environmental Protection Agency* [218]) définit le pouvoir de réchauffement global d'un composé comme la quantité d'énergie qu'une masse donnée de ce dernier peut absorber, rapportée à la quantité d'énergie absorbée par le CO_2 , sur une période de 100 ans. Le pouvoir de réchauffement global du CO_2 est donc égal à 1.

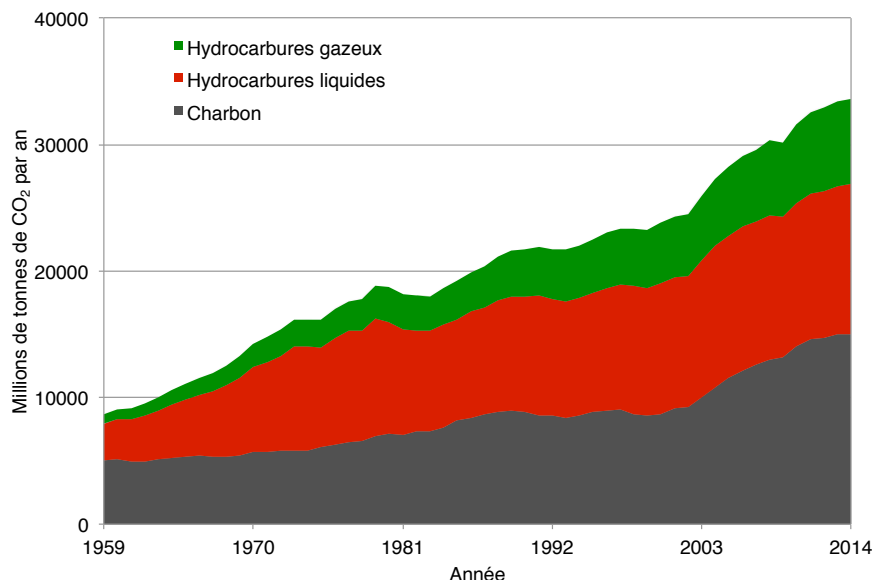


Figure 1.5 – Evolution des émissions globales de dioxyde de carbone CO_2 émis par la combustion de composés fossiles. Source : *Carbon Dioxide Information Analysis Center* [29]

Composé	Temps de résidence (années)	PRG
Dioxyde de carbone (CO_2)	n/c	1
Méthane (CH_4)	12	28-36
Protoxyde d'azote (N_2O)	114	298
Perfluorocarbures (PFC)	2 600-50 000	7 390-12 200
Hexafluorure de soufre (SF_6)	3 200	22 800

Tableau 1.1 – Temps de résidence dans l'atmosphère terrestre et pouvoir de réchauffement global (PRG) des principaux gaz à effet de serre. Source : *United States Environmental Protection Agency* [218]

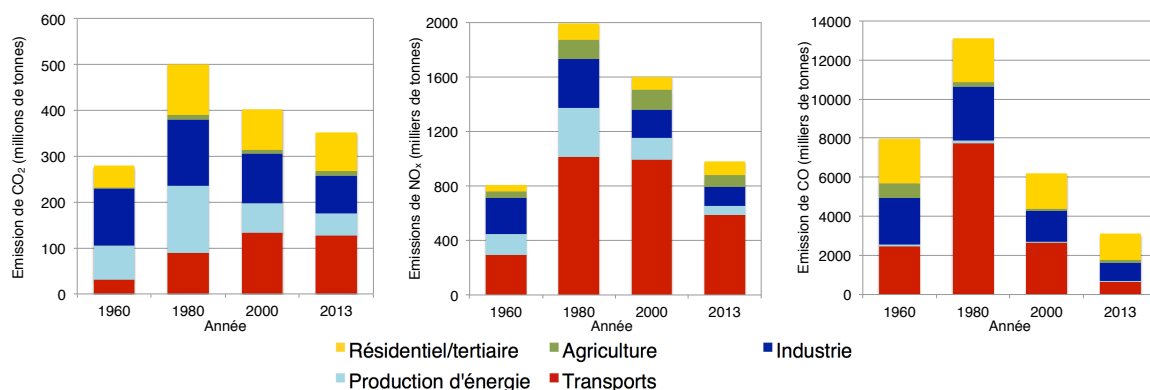


Figure 1.6 – Evolution des émissions de polluants en France (dioxyde de carbone CO_2 , oxydes d'azotes NO_x et monoxyde de carbone CO), selon le secteur d'activité.

Source : rapport de 2015 du CITEPA sur les émissions de polluants en France [30]

Norme	Année d'entrée en vigueur	HC	HC + NO _x	NO _x	CO	Particules
EURO 3	2001	0.20	-	0.15	2.30	-
		-	0.56	0.50	0.64	0.05
EURO 4	2006	0.10	-	0.08	1.00	-
		-	0.30	0.25	0.50	0.025
EURO 5	2011	0.10	-	0.06	1.00	0.005
		-	0.23	0.18	0.50	0.005
EURO 6	2015	0.10	-	0.06	1.00	0.005
		-	0.17	0.08	0.50	0.005

Tableau 1.2 – Normes européennes sur les émissions maximales de polluants pour les véhicules légers (en g/km) [1]. **Bleu** : moteurs essence, **vert** : moteurs diesel.

véhicules légers et les poids lourds, en fonction du type de motorisation utilisé (essence ou diesel). Elle est régulièrement actualisée et impose des seuils de plus en plus bas (Tab. 1.2).

Les émissions de polluants émis par l'aviation civile ne représentent qu'une faible part du secteur des transports (la majorité des émissions étant d'origine automobile), mais ne sont pas pour autant négligeables. En effet, les NO_x provenant des avions contribuent fortement à la destruction de l'ozone atmosphérique, car ils sont émis directement en altitude. De plus, les trainées de condensation des réacteurs auraient également un impact sur l'effet de serre. Ces émissions sont régulées par l'*International Civil Aviation Organization* (ICAO). Comme pour les normes EURO, les polluants mesurés sont le monoxyde de carbone, les hydrocarbures imbrûlés, les NO_x (NO et NO₂) et les particules [2]. Les quantités sont mesurées sur un cycle standard appelé *Landing and Take-off* (LTO), durant lequel la poussée est imposée et varie en fonction du temps. Les quantités maximales autorisées de polluants, notées D_p , dépendent de l'année de début de fabrication du moteur, de la vitesse de vol à laquelle il est destiné (subsonique ou supersonique), de sa poussée maximale F_{oo} exprimée en kN, du taux de compression correspondant π_{oo} , et bien sûr de l'espèce mesurée. Par exemple, pour un moteur destiné au vol subsonique, produit à partir du 1^{er} janvier 2014, dont le taux de compression est compris entre 30 et 104.7 et dont la poussée est supérieure à 89.0 kN, la quantité maximale autorisée de NO_x émise durant un cycle LTO est donnée par [2] :

$$D_p = (-9.88 + 2.0\pi_{oo})F_{oo} \quad (1.1)$$

1.1.3 Combustion et simulation numérique

Pour réduire la consommation de carburants fossiles et les émissions de polluants et respecter les normes imposées, l'amélioration des systèmes utilisant la combustion est primordiale. D'autres objectifs sont également à prendre en compte lors de la conception de tels systèmes : recherche d'une fiabilité et d'une durée de vie maximales, sécurité lors du fonctionnement, réduction du bruit pour les systèmes embarqués, etc.

Les écoulements réactifs mettent en jeu des phénomènes physico-chimiques complexes, tels que la turbulence, les transferts thermiques, les réactions chimiques, etc. Pour améliorer et optimiser les performances globales d'un système, tous ces différents phénomènes doivent être observés et étudiés, ce qui nécessite la mesure d'un certain nombre de grandeurs physiques, telles que la vitesse, la pression et la température de l'écoulement, les concentrations des espèces chimiques, etc. Cette phase d'observation

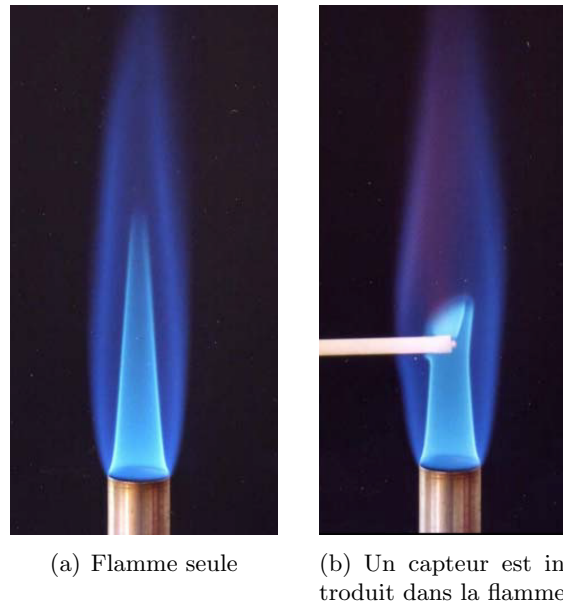


Figure 1.7 – Modification de la structure d’une flamme lors de l’utilisation d’une méthode de mesure intrusive.

n’est généralement pas aisée lorsqu’elle est faite expérimentalement, car elle nécessite l’instrumentation du système. La mise en place de capteurs (thermocouples, tubes de Pitot, sondes à fil chaud, etc.) n’est pas toujours adaptée car l’introduction d’un corps dans l’écoulement peut altérer celui-ci, par exemple en modifiant le champ de vitesse et en provoquant des échanges thermiques (Fig. 1.7). En outre, les résolutions spatiales et temporelles de ces capteurs sont parfois insuffisantes, au vu des petites échelles des phénomènes mis en jeu, en particulier de la turbulence et de la chimie.

Les méthodes de mesure optiques, basées sur l’utilisation de lasers, représentent une alternative intéressante aux capteurs. Ces méthodes, dites “non-intrusives”, présentent des résolutions spatiales et temporelles souvent supérieures. Elles permettent en outre d’effectuer des mesures non plus ponctuelles mais bi-, voire tri-dimensionnelles, grâce à l’utilisation de plusieurs nappes laser et plusieurs caméras. L’inconvénient majeur des méthodes optiques réside dans la nécessité de faire parvenir le faisceau laser jusqu’à la zone à étudier. Dans le cas d’un système complexe où la flamme est confinée entre des parois solides, tel qu’une chambre de combustion, il est parfois possible d’équiper ces parois de vitres en quartz donnant un accès à la zone d’intérêt. Cependant, ce genre de mesures est souvent impossible pour cause d’inaccessibilité ou de résistance des matériaux insuffisante, et reste la plupart du temps réservé à des systèmes “académiques” simplifiés (Fig. 1.8). Enfin, une étude paramétrique (par exemple, l’étude des performances d’une chambre de combustion pour plusieurs géométries différentes) requiert la fabrication et l’instrumentation de plusieurs prototypes, processus qui peut s’avérer extrêmement coûteux.

Face à ces inconvénients majeurs, la simulation numérique (en anglais CFD, pour *Computational Fluid Dynamics*) apparaît comme une alternative intéressante. Grâce à l’outil numérique, n’importe quelle grandeur physique peut, potentiellement, être déterminée en tout point du système étudié, avec des résolutions spatiales et temporelles qui sont essentiellement limitées par les ressources de calcul disponibles.

Grâce à l’essor de l’informatique, les moyens de calcul ont rapidement évolué durant ces dernières décennies, faisant naître les concepts de “supercalculateurs”, de “calcul massivement parallèle” et de “*High Performance Computing*” (HPC). Le site internet top500.org recense depuis 1993 les 500 super-

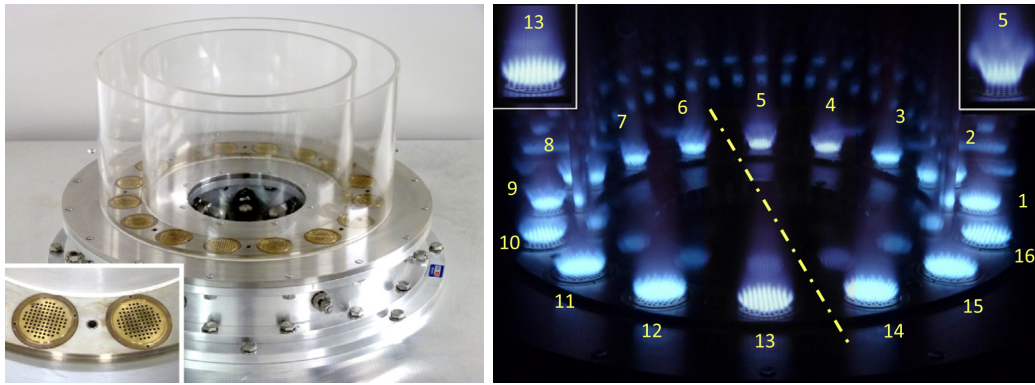


Figure 1.8 – Chambre de combustion MICCA annulaire en quartz, développée au laboratoire EM2C [19]

calculateurs les plus puissants au monde. Pour les 5 premières machines du classement, on observe depuis 2005 que la puissance des machines est multipliée environ par 10 tous les 5 ans, jusqu'à atteindre aujourd'hui des performances de l'ordre du petaflop² (voir Tab. 1.3). Durant les deux prochaines décennies, il est probable que cette évolution continue, jusqu'à atteindre l'échelle de l'exaflop³ [204]. A ce stade, la performance des processeurs elle-même n'est plus le seul facteur qui limite les performances globales du supercalculateur, et des nouvelles contraintes technologiques apparaissent :

- augmentation du temps de communication entre processeurs ;
- difficultés à stocker et traiter la très grande quantité de données générées ;
- augmentation de la consommation électrique (consommation des processeurs et refroidissement du système).

Pour faire face à ces défis, l'architecture des supercalculateurs sera amenée à être modifiée (calculs sur GPU⁴, ajout de co-processeurs, etc.).

Malgré cette croissance fulgurante des ressources de calcul disponibles, la simulation numérique de la combustion turbulente n'est toujours pas une tâche sans difficulté, et reste un défi scientifique et technique. Les équations de conservation de Navier-Stokes, qui régissent le comportement d'un écoulement, comportent des termes non-linéaires, empêchant (a priori⁵) leur résolution analytique. Le système étudié doit donc être divisé en volumes de contrôle, dont l'ensemble forme un maillage, afin de résoudre ces équations sous une forme discrétisée. Une des difficultés majeures de la combustion numérique réside dans la variété des échelles spatiales et temporelles des phénomènes physiques à étudier. En effet, les écoulements de taille macroscopique peuvent inclure des phénomènes dont les échelles spatiales sont de l'ordre du micromètre (front de flamme, petites échelles de la turbulence, etc.). Afin de capter ces plus petits phénomènes, la taille des éléments du maillage doit être du même ordre de grandeur que ces phénomènes. La simulation directe d'un écoulement réactif turbulent dans un système de quelques dizaines de centimètres nécessiterait un maillage de plusieurs centaines de milliards de mailles, aujourd'hui inconcevable.

A cause de ces contraintes, la résolution numérique directe des équations de Navier-Stokes (DNS,

2. 1 petaflops = 10^{15} flops. Le flops (*floating-point operation per second*) est une unité permettant de mesurer les performances d'un système informatique, en indiquant le nombre d'opérations sur des nombres réels que peut effectuer ce dernier en une seconde.

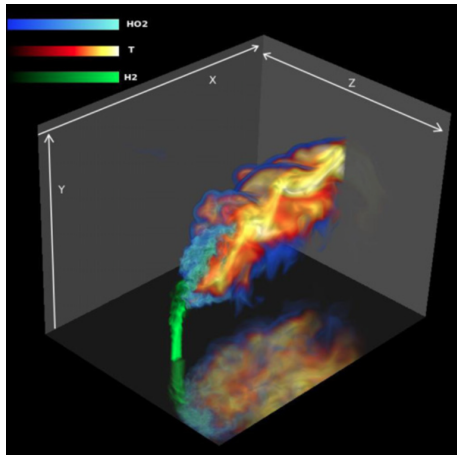
3. 1 exaflops = 10^{18} flops.

4. *Graphics Processing Unit*, i.e. carte graphique.

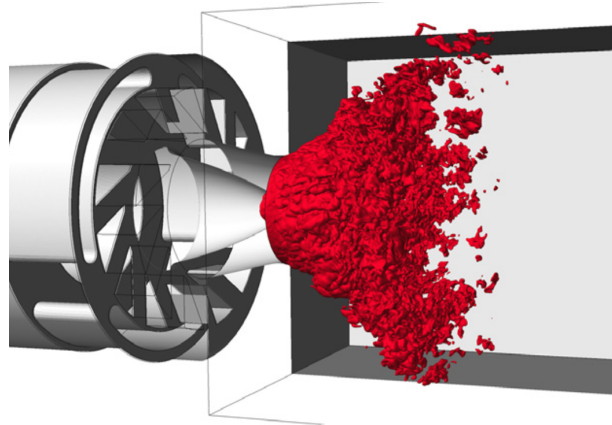
5. Le *Clay Mathematics Institute* (www.claymath.org, consulté en mai 2016) a désigné la résolution analytique des équations de Navier-Stokes comme un des problèmes mathématiques majeurs du millénaire, et promet un prix d'un million de dollars pour la résolution de ce problème. Cela revient à trouver une solution analytique, ou à montrer la non-existence d'une telle solution.

Rang	Nom	Lieu	Nombre de coeurs	Performances mesurées (TFlops/s)	Puissance consommée (kW)
Novembre 2015					
1	Tianhe-2	National Super Computer Center (Chine)	3 120 000	33 862.7	17 808
2	Titan	Oak Ridge National Laboratory (Etats-Unis)	560 640	17 590.0	8 209
3	Sequoia	Lawrence Livermore National Laboratory (Etats-Unis)	1 572 864	17 173.2	7 890
4	K computer	RIKEN Advanced Institute for Computational Science (Japon)	705 024	10 510.0	12 660
5	Mira	Argonne National Laboratory (Etats-Unis)	786 432	8 586.6	3 945
44	Occigen	CINES (France)	50 544	1 628.8	935
62	Curie (thin nodes)	CEA (France)	77 184	1 359.0	2 251
70	Turing	IDRIS (France)	98 304	1 073.3	493
Novembre 2010					
1	Tianhe-1A	National Supercomputer in Tianjin (Chine)	186 368	2 566.0	4 040
2	Jaguar	Oak Ridge National Laboratory (Etats-Unis)	224 162	1 759.0	6 950
3	Nebulae	National Supercomputer in Shenzhen (Chine)	120 640	1 271.0	2 580
4	TSUBAME 2.0	GSIC Center (Japon)	73 278	1 192	1 398
5	Hopper	National Energy Research Scientific Computing Center (Etats-Unis)	153 408	1 054.0	2 910
Novembre 2005					
1	BlueGene/L	Lawrence Livermore National Laboratory (Etats-Unis)	131 072	280.6	1 433
2	BGW	IBM Research Center (Etats-Unis)	40 960	91.3	448
3	ASC Purple	Lawrence Livermore National Laboratory (Etats-Unis)	10 240	63.4	1 671
4	Columbia	NASA Research Center (Etats-Unis)	10 160	51.9	n.c.
5	Thunderbird	Sandia National Laboratory (Etats-Unis)	8 000	38.3	n.c.

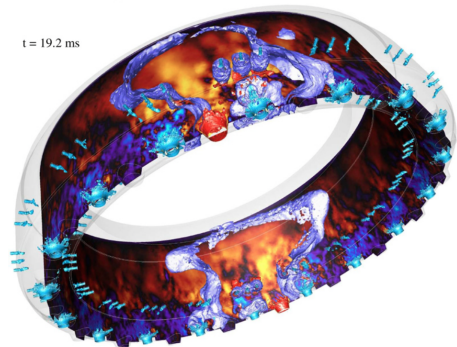
Tableau 1.3 – Extrait du classement mondial des super-calculateurs, en 2005, 2010 et 2015. Notons que la machine aujourd’hui en tête de ce classement a encore évolué après la réalisation de ce tableau. Elle compte désormais plus de dix millions de coeurs pour des performances trois fois supérieures à Tianhe-2 (juin 2016). Source : www.top500.org



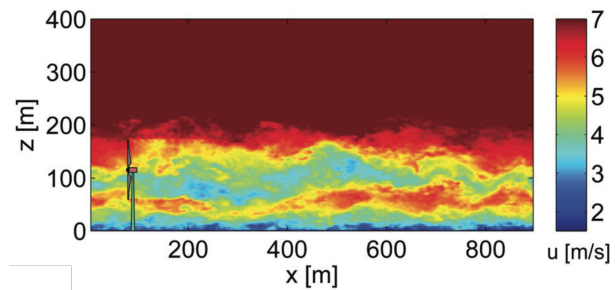
(a) DNS d'une flamme hydrogène/air [79], avec un mécanisme cinétique détaillé.



(b) DNS d'un injecteur à swirl [153], avec tabulation de la chimie.



(c) LES de l'allumage d'une chambre de combustion annulaire complète [15]. Un mécanisme cinétique à 1 étape est utilisé.



(d) LES de l'écoulement autour d'une éolienne [134]. Le domaine a une taille de l'ordre du kilomètre, et des mailles de 3 mètres sont utilisées.

Figure 1.9 – De la DNS de cas “académiques” à la LES de systèmes complets.

pour *Direct Numerical Simulation*) avec des chimies détaillées, reste confinée aux cas “académiques”, sur des petits domaines de calcul de quelques millimètres de côté (Fig. 1.9(a)). Des modèles ont alors été introduits dans les équations de Navier-Stokes afin de modéliser une partie des petites échelles de la turbulence de l'écoulement (on parle alors de simulation aux grandes échelles, ou en anglais, LES, pour *Large Eddy Simulation*), voire la totalité (méthode RANS, pour *Reynolds Averaged Navier-Stokes*). Ces petites échelles n'étant plus résolues, il devient alors possible d'augmenter la taille des mailles, et donc de réduire le nombre de mailles total. Des alternatives aux mécanismes cinétiques détaillés, comme les schémas réduits ou les méthodes de tabulation, ont également été proposés pour simplifier le traitement de la chimie et en limiter le coût, en réduisant la raideur des systèmes et en abaissant les exigences sur la finesse du maillage. L'introduction de ces modèles a rendu possible la simulation de systèmes réels complets (Fig. 1.9). L'ajout de modèles trop simplifiés se fait toutefois au détriment de la fiabilité et de la fidélité de la simulation, et un compromis doit être fait entre précision et durée du calcul.

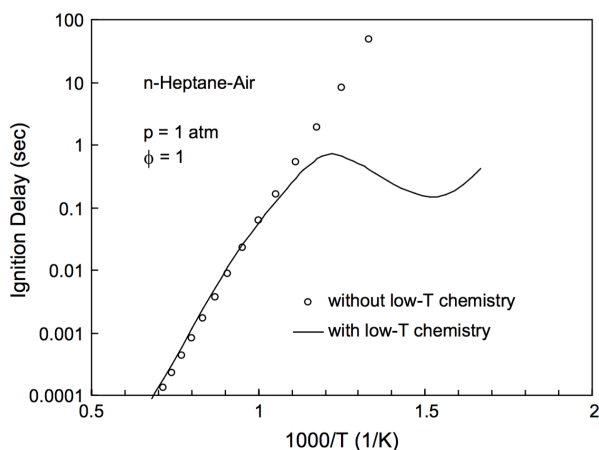


Figure 1.10 – Temps d’auto-allumage pour différents mélanges heptane/air, obtenus en utilisant des mécanismes avec [41] et sans [88] effets de chimie à basse température. La figure est extraite de [138].

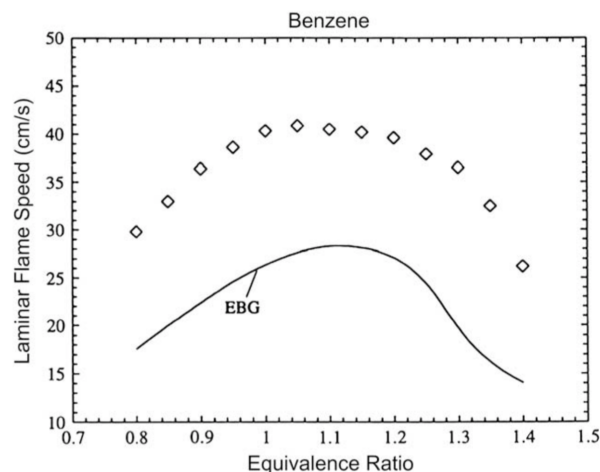


Figure 1.11 – Vitesses de flammes benzène/air à pression atmosphérique pour plusieurs valeurs de richesse. — valeurs calculées avec le mécanisme de la référence [59]. $\diamond$ valeurs expérimentales de [44]. La figure est extraite de [138].

1.2 Contexte scientifique

1.2.1 Rôle des mécanismes cinétiques détaillés dans la combustion

La combustion d’un hydrocarbure met en jeu des processus chimiques complexes, qui conduisent à un dégagement de chaleur, et à la transformation à travers la flamme du mélange de combustible et d’oxydant en gaz brûlés. La finesse de la modélisation de ces processus conditionne le niveau de fidélité de l’ensemble de la simulation. Les chimistes continuent donc de proposer des mécanismes cinétiques détaillés qui contiennent le plus grand nombre possible d’espèces et de réactions chimiques se produisant dans le front de flamme et dans les gaz brûlés.

La mise en œuvre de tels mécanismes est indispensable lorsqu’il s’agit de prédire précisément certains phénomènes physiques complexes. La figure 1.10 compare le délai d’auto-allumage de mélanges homogènes stoechiométriques heptane/air, obtenus avec des mécanismes incluant [41] ou pas [88] les effets de chimie à basse température [123]. Dans ce cas, seul le mécanisme le plus détaillé permet la prise en compte du phénomène de coefficient de température négatif. La capacité à calculer la fraction massique d’espèces minoritaires, comme les polluants, dépend également de l’utilisation d’un mécanisme cinétique détaillé adapté.

Par ailleurs, l’utilisation de mécanismes assez détaillés assure en général une validité des calculs sur des gammes de pression, température et richesse assez larges, telles qu’on peut en rencontrer dans certaines applications pratiques (e.g. moteurs aéronautiques, moteurs-fusées, etc). Lorsqu’il est employé en dehors de son domaine de validité, un mécanisme peut en effet mener à des erreurs importantes sur le calcul de grandeurs primordiales pour la dynamique de l’écoulement, comme la vitesse de flamme. La figure 1.11 compare les vitesses de flammes benzène/air, calculées avec le mécanisme cinétique issu de la référence [59] pour plusieurs valeurs de richesse, aux valeurs expérimentales de [44]. Les valeurs calculées sont largement sous-estimées par rapport à l’expérience, car les taux de réaction du mécanisme utilisé n’ont pas la bonne dépendance en pression.

1.2.2 Traitement de la chimie dans les codes DNS/LES

1.2.2.1 Difficultés inhérentes à l'utilisation de mécanismes cinétiques détaillés dans un code DNS/LES

Introduire des mécanismes cinétiques détaillés dans les codes de simulation numérique de la combustion, en particulier les codes DNS/LES, apparaît donc comme essentiel. Cela consiste à calculer les propriétés diffusives de l'écoulement et les taux de réaction chimique dans le front de flamme, afin de prédire correctement les grandeurs macroscopiques de l'écoulement, telles que la vitesse de flamme, la température et la composition des gaz brûlés.

Deux difficultés majeures font de la combustion un point délicat à traiter dans la simulation numérique des écoulements fluides. La première est le nombre élevé de variables à transporter et de grandeurs à calculer, engendrées par l'utilisation de mécanismes cinétiques de plus en plus gros au fur et à mesure des avancées scientifiques dans le domaine de la cinétique chimique (Fig. 1.12). Par ailleurs, on observe que la taille des mécanismes tend à augmenter de façon quasi-exponentielle avec la taille des molécules qui composent le combustible considéré. Les mécanismes du méthane comportent en effet quelques dizaines d'espèces, alors que pour l'heptane ou l'octane ils peuvent en contenir plusieurs centaines, voire plusieurs milliers. A titre d'exemple, Sarathy *et al.* [194] ont développé un mécanisme cinétique détaillé pour la combustion des alcanes linéaires ou peu ramifiés (n-alkanes et méthylalkanes), que l'on trouve habituellement dans les carburants aéronautiques et automobiles, contenant environ 7200 espèces et 31400 réactions.

La seconde difficulté notable réside dans la différence entre les échelles spatiales et temporelles macroscopiques du système à simuler et celles de la chimie. Dans l'exemple typique des moteurs, la longueur caractéristique d'une chambre de combustion est de l'ordre de la dizaine de centimètres, tandis que le temps mis par l'écoulement pour parcourir la chambre est de quelques dixièmes de seconde. Ces grandeurs sont à comparer avec les échelles spatiales d'une flamme, qui varient entre quelques microns et quelques millimètres, et les échelles temporelles qui se répartissent sur plusieurs ordres de grandeurs et qui peuvent descendre en dessous de 10^{-12} secondes (Fig. 1.13).

Au vu de ces difficultés, le traitement de la chimie dans les codes DNS/LES fait encore aujourd'hui l'objet de très nombreuses études. Un état de l'art non-exhaustif des principales méthodes destinées à introduire la chimie dans les codes DNS/LES est maintenant proposé. Deux principales familles de méthodes sont mises en avant :

- La première consiste à réduire la taille du mécanisme cinétique détaillé initial, en supprimant judicieusement des espèces et des réactions chimiques. Un mécanisme dit "réduit" ou "squelettique" est alors obtenu.
- La seconde consiste à stocker et à lire certaines données (souvent des fractions massiques d'espèces chimiques) dans des tables, au lieu de les calculer au cours de la simulation. On parlera par la suite de méthodes de "tabulation".

Dans certains cas, le transport du mécanisme détaillé est possible, et aucune de ces méthodes n'est nécessaire. Le système formé par les équations de transport des espèces reste toutefois très raide, et la mise en œuvre de méthodes numériques adaptées est nécessaire, pour effectuer l'avancement en temps de la simulation. Les systèmes associés aux mécanismes squelettiques peuvent également imposer des conditions de stabilité très sévères. Un paragraphe est d'abord consacré à ces méthodes numériques, puis les méthodes de réduction et de tabulation sont présentées. Les équations de transport et les autres notions abordées ici seront détaillées dans les chapitres suivants.

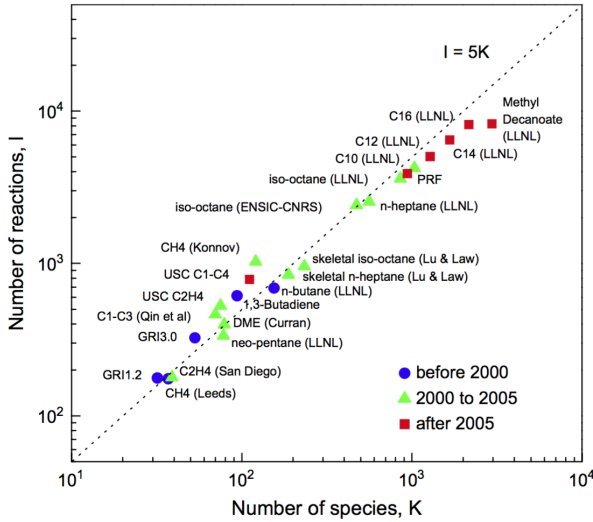


Figure 1.12 – Taille de mécanismes cinétiques pour les hydrocarbures, colorés en fonction de leur année approximative de développement [137]. La figure est extraite de [138].

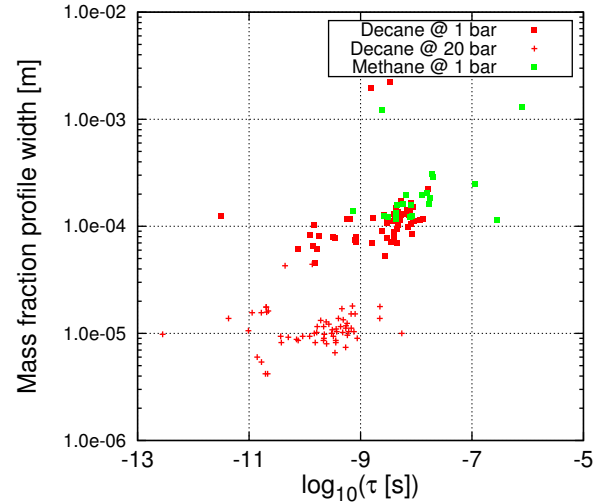


Figure 1.13 – Largeur des profils de fraction massique et temps chimiques caractéristiques d'espèces minoritaires, calculés dans des flammes 1D méthane/air et décane/air, à l'aide du code DNS/LES SiTCom-B utilisé au cours de cette thèse.

1.2.2.2 Méthodes numériques pour le transport d'un mécanisme détaillé ou squelettique

Une fois qu'un mécanisme cinétique détaillé ou squelettique adapté au cas simulé (i.e. en accord avec le combustible utilisé, et avec les valeurs de pression, richesse et température balayées dans la simulation) a été sélectionné, la méthode qui semble la plus naturelle et la plus intuitive pour l'introduire dans un code combustion numérique consiste à résoudre une équation de transport pour chaque espèce présente dans ce mécanisme. Par la suite, cette famille de méthodes sera désignée par "chimie transportée".

Comme évoqué précédemment, les temps caractéristiques de la chimie sont très faibles [144], ce qui se répercute sur les équations de transport des espèces via leur terme source, en les rendant très "raides". La résolution numérique de ces équations avec un schéma explicite requiert obligatoirement un pas de temps du même ordre de grandeur que les temps caractéristiques de la chimie. Dans le cas d'une combustion méthane/air classique, le pas de temps de certaines espèces est inférieur au pas de temps convectif d'un écoulement compressible (environ 10^{-7} - 10^{-8} s), mais reste toutefois du même ordre de grandeur. Cependant, pour un combustible plus lourd comme le décane, les pas de temps imposés par la chimie sont plusieurs ordres de grandeurs en dessous du pas de temps convectif. Même si l'utilisation d'un schéma explicite pour la simulation de la combustion de l'hydrogène ou du méthane dans un code DNS compressible reste envisageable bien que coûteuse [54, 127, 31], elle est impossible lorsque des combustibles plus complexes sont utilisés. Un trop grand nombre d'avancements temporels serait alors nécessaire, et ne pourrait être supporté par aucun ordinateur actuel. Dans le cas d'un code "low Mach", une résolution entièrement explicite est par ailleurs hors de portée quelque soit le combustible considéré, le pas de temps convectif étant largement supérieur à celui d'un code compressible.

Schémas numériques semi-implicites

Des méthodes dites de "splitting" ont alors été développées, pour découpler mathématiquement la partie

chimique de la partie convection/diffusion des équations des espèces, afin de les traiter séparément avec un schéma numérique adapté. L'idée associée est d'utiliser un schéma implicite pour résoudre la partie chimique raide, tout en continuant d'utiliser des méthodes explicites, moins coûteuses en temps de calcul, pour traiter les termes convectifs et diffusifs, moins raides. Cette méthode, introduite par Godunov *et al.* [8] et Strang [211], a ainsi donné lieu à des schémas numériques qualifiés de “semi-implicites”. Les références dans la littérature sont extrêmement nombreuses [111, 197, 203, 243, 208, 191].

Les schémas semi-implicites permettent donc une augmentation du pas de temps global de la simulation. Trois limitations principales sont toutefois à prévoir :

- les phénomènes de convection, de diffusion et de réaction chimique sont fortement couplés d'un point de vue physique. Les découpler dans les équations de transport des espèces nécessite donc la formulation d'hypothèses mathématiques assez fortes. Celles-ci sont généralement sans importance pour les configurations stationnaires, mais peuvent induire dans certains cas des erreurs sur les résultats ou encore une réduction de la précision de la résolution des équations, notamment à proximité de fronts de flamme instationnaires [155, 111]. Des erreurs importantes ont également été constatées dans certains cas où le pas de temps d'intégration sur une itération est élevé [207]. Des schémas semi-implicites traitant simultanément la chimie, la convection et la diffusion ont ainsi été proposés [73, 195].
- bien que les schémas semi-implicites autorisent une augmentation du pas de temps, réduisant ainsi le nombre d'itérations nécessaires pour simuler un temps physique donné, ils augmentent le coût par itération. Des solveurs particuliers sont utilisés pour résoudre de manière implicite la partie chimique raide des équations de transport. Ils sont basés sur l'utilisation d'un algorithme appelé “*Backward-Differentiation Formulas*” et implémentés dans des bibliothèques tels que VODE [23] et ses dérivés. Lors de cette procédure, la matrice jacobienne des fractions massiques des espèces doit d'abord être calculée. Le coût de calcul est proportionnel à N_{sp}^2 ou N_r^2 si elle est calculée numériquement, ou à N_r si calculée analytiquement [138] (où N_{sp} est le nombre d'espèces et N_r le nombre de réactions du mécanisme cinétique). Cette matrice doit ensuite subir une décomposition LU⁶, qui nécessite un temps de calcul proportionnel à N_{sp}^3 . Lorsque le nombre d'espèces impliquées est grand, cette dernière opération devient donc extrêmement coûteuse et peut rendre la méthode de *splitting* totalement inefficace. Le coût associé à la décomposition LU peut néanmoins être allégé grâce à des méthodes de préconditionnement [149], ou à des techniques exploitant la faible densité des matrices considérées [165, 166, 198, 5].
- L'effort de calcul que doit fournir VODE est maximal dans le front de flamme, tandis qu'il est nul dans les gaz frais où aucune réaction chimique n'a lieu, et très faible dans les gaz brûlés (Fig. 1.14). Dans le contexte du calcul massivement parallèle, la charge de travail de chaque processeur se trouve déséquilibrée, et un algorithme complexe doit être mis en place pour ré-équilibrer les charges [11].

Schémas numériques entièrement explicites

Face à ces inconvénients, des algorithmes de Runge-Kutta stabilisés, connus sous le nom de schémas de “Runge-Kutta-Chebyshev” (RKC), ont été développés pour traiter les problèmes raides [124, 150]. La limite de stabilité de ces schémas est grossièrement proportionnelle au carré du nombre d'étapes qui les compose [227]. Par conséquent, le coût CPU des schémas RKC peut rapidement dépasser celui des méthodes semi-implicites lorsque le problème devient trop raide, jusqu'à devenir rédhibitoire.

Certains auteurs ont proposé des méthodes destinées à atténuer la raideur des équations de trans-

6. La décomposition LU consiste à décomposer une matrice sous la forme d'un produit d'une matrice triangulaire inférieure L (*Lower*) par une matrice triangulaire supérieure U (*Upper*).

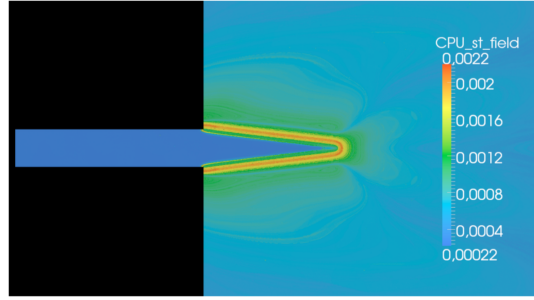


Figure 1.14 – Répartition du temps de calcul de la chimie dans une flamme de type bec Bunsen, sans répartition des charges sur tous les processeurs. [11]

port, afin de continuer à utiliser des schémas numériques entièrement explicites. Dans l’algorithme de Valorani et Goussis [220], les petites échelles temporelles sont identifiées avec la méthode *Computational Singular Perturbation* (CSP) [121]. L’avancement temporel est réalisé avec les termes produisant les échelles lentes, tandis que la contribution des échelles rapides est prise en compte sous la forme d’une correction à la fin de chaque pas de temps. Cette méthode assure une précision comparable à celle des méthodes semi-implicites, mais n’offre pas de gains concluants sur le coût du calcul.

Lu *et al.* ont développé une méthode consistant à atténuer la raideur due à la chimie, en corrigeant les taux des réactions mettant en jeu les espèces dites quasi-stationnaires (ou “QSS”, pour *Quasi-Steady State*) et les espèces à l’équilibre partiel [139]. Cette méthode fournit des bons résultats pour des pas de temps d’intégration qui restent relativement faibles. Elle est donc particulièrement adaptée pour des calculs DNS, qui requièrent une bonne résolution spatiale et donc des pas de temps convectifs faibles, et n’a pas été validée pour des simulations LES.

Schémas numériques entièrement implicites

Enfin, une résolution entièrement implicite des équations de Navier-Stokes pourrait être envisagée, afin d’augmenter fortement le pas de temps d’intégration. Malheureusement, dans le cadre de la simulation numérique de la combustion, le coût lié à l’utilisation de schémas entièrement implicites est totalement prohibitif [78], du fait de la taille importante des systèmes qu’il faudrait alors inverser.

Hormis le pas de temps d’intégration, le coût de calcul de chaque itération lié à la chimie est un facteur qui doit être pris en compte lors de l’utilisation de méthodes de chimie détaillée transportée. En effet, la taille des mécanismes cinétiques étant souvent importante, le temps de calcul par itération est par construction élevé, et devient un paramètre bien plus critique que dans n’importe quelle autre méthode de traitement de la chimie. Il doit donc absolument être maîtrisé pour assurer la faisabilité des simulations. Trois points doivent être traités avec une attention particulière :

- le calcul des coefficients de diffusion des espèces nécessite l’évaluation de N_{sp}^2 coefficients binaires. Pour des raisons pratiques, ils sont souvent stockés sous la forme d’un polynôme du logarithme de la température, et une exponentielle doit être calculée pour accéder à chacun d’entre eux. Ces N_{sp}^2 appels de fonctions sont effectués dans chaque cellule du domaine de calcul, à chaque sous-itération du schéma d’avancement temporel, et peuvent devenir particulièrement coûteux lorsque la taille du mécanisme cinétique est importante. Une tabulation de ces valeurs peut conduire à une réduction du temps de calcul [154, 138].
- comme évoqué précédemment, lors de l’utilisation de méthodes numériques semi-implicites le coût d’exécution du solveur implicite peut évoluer, dans le pire des cas, comme N_{sp}^3 . Ce coût peut être fortement réduit à l’aide de techniques de calcul adaptées. Les solveurs explicites ne

sont affectés par aucun surcoût.

- le calcul des taux de réactions nécessite l'évaluation de fonctions exponentielles, du fait de l'utilisation de la loi d'Arrhenius. Ces appels de fonctions, très coûteux, sont effectués pour chaque réaction du mécanisme, dans chaque cellule du domaine de calcul, et à chaque sous-itération du schéma d'avancement temporel. Une tabulation des valeurs peut également être envisagée. Notons que le traitement de ce point est moins crucial que les deux précédents, le coût d'évaluation des taux de réactions évoluant linéairement avec le nombre de réactions présentes dans le mécanisme.

1.2.2.3 Réduction des mécanismes

Le transport de mécanismes cinétiques complets reste une méthode extrêmement coûteuse, malgré la mise en œuvre de méthodes numériques avancées comme celles présentées précédemment. L'utilisation de mécanismes réduits contenant un nombre limité d'espèces et de réactions, dérivés à partir de mécanismes détaillés, est une alternative pour réduire le temps de calcul des simulations. En plus de l'abaissement du nombre d'espèces à transporter, la diminution de la raideur induite par la chimie peut dans certains cas être un effet positif également apporté par la réduction du mécanisme, grâce à la suppression de certaines espèces radicalaires.

La procédure de réduction de mécanismes de grande taille est souvent complexe, à cause des phénomènes fortement non-linéaires qui caractérisent ces mécanismes et qui peuvent se produire dans des conditions de température, pression et composition du mélange variées. Des méthodes mathématiques rigoureuses ont donc été développées au cours des dernières décennies. Elles se répartissent dans plusieurs familles principales, introduites ci-après : réduction squelettique, *lumping* et analyse des temps caractéristiques. En pratique, lorsque qu'une réduction de mécanisme détaillé est envisagée, plusieurs méthodes sélectionnées dans chacune de ces familles sont généralement appliquées l'une après l'autre [138].

Réduction squelettique

La première famille de méthodes de réduction consiste à retirer des espèces et des réactions du mécanisme détaillé, afin d'obtenir un mécanisme réduit (ou "squelettique").

Comme évoqué précédemment, une réduction du nombre d'espèces a un impact plus significatif sur le temps de calcul qu'une réduction du nombre de réactions. Sur des intervalles restreints de température et de richesse, certaines espèces minoritaires ont une influence très limitée sur les espèces majoritaires d'intérêt. La difficulté consiste à identifier les espèces minoritaires à supprimer, toutes les espèces du mécanisme détaillé étant plus ou moins couplées entre elles.

La méthode DRG (*Directed Relation Graph*) [138] consiste à former un graphe dont les points sont les espèces. Chaque ligne entre deux points représente les interactions entre deux espèces, basées sur la contribution d'une espèce au terme source de l'autre espèce, quantifiée par la grandeur r . En particulier, l'erreur induite sur une espèce A par la suppression d'une espèce B est donnée par :

$$r_{AB} = \frac{\sum_{i=1}^{N_r} |\nu_{A,i} Q_i \delta_{B,i}|}{\sum_{i=1}^{N_r} |\nu_{A,i} Q_i|} \quad (1.2)$$

où $\nu_{A,i}$ est le coefficient stœchiométrique de l'espèce A dans la réaction i , Q_i est le taux de la réaction i et $\delta_{B,i} = 1$ si l'espèce B intervient dans la réaction i , et vaut 0 sinon. L'erreur est jugée significative si $r_{AB} > \varepsilon$, où ε est une valeur seuil fixée par l'utilisateur. La figure 1.15 montre un exemple de graphe obtenu avec la méthode DRG. Une flèche dirigée de A vers B indique que la suppression de l'espèce B induirait une erreur importante sur le calcul de A. L'espèce A est une espèce cible, typiquement un

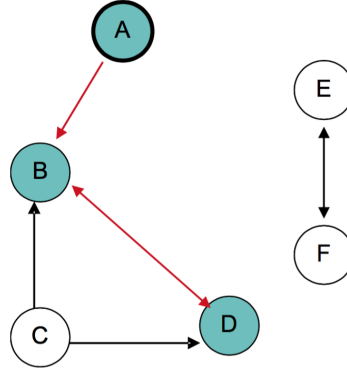


Figure 1.15 – Schéma de principe de la méthode DRG [138]. $A \rightarrow B$ indique que l'espèce B est déterminante dans le calcul de A ($r_{AB} > \epsilon$). La couleur bleue indique les espèces à conserver. L'espèce A est une espèce cible.

réactif, ou un produit de combustion choisi par l'utilisateur. L'espèce B doit donc être conservée dans le schéma. L'espèce D influe sur le calcul de B, et doit donc également être conservée. Au contraire, C, E et F peuvent être supprimées sans conséquence pour les espèces à conserver. Dans ce cas, l'influence directe de l'espèce D sur l'espèce A n'est pas prise en compte, car les influences $A \rightarrow B$ et $B \rightarrow D$ sont traitées séparément. Il est possible qu'en pratique, $A \rightarrow D$ soit négligeable, et il ne serait alors plus utile de conserver l'espèce D dans le mécanisme réduit. La méthode DRGEP [164] (Directed Relation Graph with Error Propagation) permet de prendre en compte cette "propagation de l'erreur", et constitue donc une méthode plus restrictive aboutissant à des mécanismes plus réduits que DRG seul.

Des méthodes basées sur l'étude de la matrice jacobienne des espèces peuvent également être employées, comme les analyses de sensibilité [214, 213]. La matrice jacobienne, généralement notée J , quantifie la dépendance du terme source $\dot{\omega}_k$ d'une espèce k aux fractions massiques Y_i des autres espèces i :

$$J_{ki} = \frac{\partial \dot{\omega}_k}{\partial Y_i} \quad (1.3)$$

La matrice jacobienne réduite J^* est définie par :

$$J_{ki}^* = \frac{Y_i}{\dot{\omega}_k} \frac{\partial \dot{\omega}_k}{\partial Y_i} \quad (1.4)$$

L'influence de l'espèce i sur un groupe de N_{test} espèces cibles est estimée à partir du paramètre de sensibilité globale B_i :

$$B_i = \sum_{k=1}^{N_{test}} J_{ki}^{*2} \quad (1.5)$$

L'espèce i est supprimée du mécanisme si B_i est en dessous d'une valeur seuil choisie par l'utilisateur. Valorani *et al.* [219] proposent quant à eux l'utilisation de la méthode CSP pour déterminer l'influence de chacune des espèces sur les dynamiques lentes et rapides de toutes les autres espèces. L'objectif est de prendre en compte les influences de chacune des espèces aux composantes lentes et rapides des variations des espèces cibles, et pas seulement leur contribution aux taux de réactions des espèces cibles.

Des algorithmes d'optimisation ont également été envisagés pour sélectionner les espèces à conserver dans le mécanisme réduit [160, 57, 12, 202]. Elliot *et al.* [57] utilisent un algorithme génétique pour réduire un mécanisme pour la combustion d'un substitut de carburant aéronautique. L'algorithme est d'abord mis en oeuvre pour sélectionner les espèces à conserver, puis utilisé une seconde fois pour

optimiser les constantes des lois d'Arrhenius, en prenant comme référence des données expérimentales.

Dans les travaux de Jaouen *et al.* [100, 101], une procédure automatique, utilisant la méthode DRGEP pour choisir les espèces et les réactions chimiques à conserver, puis un algorithme génétique pour optimiser les valeurs des constantes d'Arrhenius des réactions chimiques restantes, est développée pour réduire des mécanismes cinétiques pour la combustion du méthane. Cette approche automatique vise à accélérer la procédure de réduction et à la rendre accessible à des utilisateurs non-experts, tout en limitant les choix arbitraires.

La suppression des espèces entraîne naturellement la suppression des réactions qui n'impliquent que les espèces supprimées. Des méthodes adaptées supplémentaires peuvent être mises en œuvre pour tenter de réduire encore le nombre de réactions du mécanisme ainsi obtenu. Ces techniques incluent notamment la méthode CSP [146], ou encore la méthode PCA [22] (Principal Component Analysis), une variante avancée de l'analyse de sensibilité.

Lumping

En complément des méthodes de réduction présentées précédemment, il est parfois possible de regrouper plusieurs espèces k , dont les propriétés thermiques et diffusives sont similaires, en une seule espèce fictive K . Seule l'espèce K est alors transportée, tandis que les fractions massiques des espèces individuelles k , nécessaires au calcul des taux de réaction, sont déduites de relations algébriques reliant l'espèce fictive K à chaque espèce réelle k . Cette méthode, désignée sous le terme de *lumping* [91, 163, 68], est particulièrement utile pour regrouper les isomères qui sont produits lors de la combustion de carburants lourds (n-heptane, kérosène, etc).

Analyse des échelles de temps caractéristiques

La troisième famille de méthodes de réduction consiste à effectuer une analyse des échelles temporelles qui caractérisent le système chimique, afin d'en déduire des relations algébriques entre certaines espèces du mécanisme. Les espèces concernées ne sont pas retirées du mécanisme à proprement parler, cependant leurs fractions massiques ne sont plus obtenues en résolvant leurs équations de transport, mais à l'aide de ces relations algébriques.

L'hypothèse d'état quasi-stationnaire [167] (ou QSS, pour *Quasi-Steady State*) suppose qu'une espèce est consommée aussi rapidement qu'elle est produite. En conséquence, le taux net de réaction d'une espèce QSS est quasiment nul. Notons que les espèces QSS peuvent éventuellement être identifiées de façon systématique avec des méthodes basées sur l'étude des temps caractéristiques du système chimique, telles que CSP [136] ou ILDM [144] (*Intrinsic Low-Dimensional Manifold*).

L'hypothèse de QSS conduit à la formation de systèmes d'équations dont les inconnues sont les espèces QSS, et dont les autres paramètres sont les fractions massiques des espèces non-QSS, obtenues par la résolution des équations de transport [135, 241]. Lorsque plusieurs espèces QSS sont impliquées dans une même réaction, ce système devient non-linéaire, et sa résolution doit être traitée avec une attention particulière, pour ne pas consommer plus de temps qu'en nécessiterait le transport des espèces QSS, ce qui irait à l'encontre de l'objectif de cette méthode. Lu et Law [135] ont contourné cette difficulté en linéarisant le système, après avoir montré la faible contribution des réactions responsables des non-linéarités, du fait des très faibles concentrations des espèces QSS.

Mécanismes globaux

Les mécanismes globaux sont les schémas cinétiques les plus simples qui existent. Ils sont en général composés de quelques réactions seulement, mettant en jeu un nombre très faible d'espèces. Notons qu'ils ne sont pas des mécanismes "réduits" à proprement parler, puisqu'ils ne sont pas issus de mécanismes détaillés, mais construits à partir d'hypothèses globales sur la flamme ou basés sur des analyses

asymptotiques [167, 169, 200].

De tels mécanismes sont conçus pour calculer avec une précision raisonnable un jeu limité de grandeurs d'intérêt, comme la vitesse de flamme, la température des gaz brûlés, ou encore la concentration de produits majoritaires, comme H_2O ou CO_2 . Certaines grandeurs comme le temps d'auto-allumage sont néanmoins difficiles à reproduire [138].

Pour conduire à des résultats les plus proches possibles des données expérimentales ou des mécanismes détaillés, les constantes de ces mécanismes doivent être ajustées de la manière la plus fine possible. Cette procédure, loin d'être triviale, peut demander un certain savoir-faire en l'absence de méthodes mathématiques génériques et automatiques (cf. Westbrook et Dryer [233], Jones et Lindstedt [104], Coffee *et al.* [37]). Dans ce contexte, Polifke *et al.* [176] ont proposé d'optimiser les coefficients des lois d'Arrhenius à l'aide d'un algorithme génétique.

Historiquement, les mécanismes globaux ont été privilégiés par les utilisateurs de codes de CFD, du fait des faibles ressources de calculs qu'ils requièrent. Malgré la croissance rapide des moyens informatiques, de tels mécanismes sont encore développés et utilisés aujourd'hui, en particulier lorsqu'il s'agit de modéliser la combustion de carburants complexes comme le kérosène. On peut citer à titre d'exemple le mécanisme BFER [70], composé de 2 réactions dont les constantes pré-exponentielles sont ajustées en fonction de la richesse.

1.2.2.4 Méthodes de tabulation

Sous certaines conditions, il est possible d'exprimer les grandeurs du système chimique en fonction d'un nombre réduit de variables. De cette façon, seules ces quelques variables sont transportées au cours de la simulation, tandis que les autres grandeurs sont déduites des variables transportées. En pratique, ces grandeurs thermochimiques sont préalablement calculées avec le mécanisme cinétique complet, et stockées dans une table dont les paramètres d'entrée sont les variables transportées. L'intérêt majeur d'une telle méthode, connue sous le nom de "tabulation de la chimie", est une réduction importante du coût de la simulation, tout en conservant les avantages du mécanisme cinétique détaillé.

Une grande partie des méthodes de tabulation reposent sur l'identification d'une "variété" mathématique, ou *manifold*, qui est un sous-espace de l'espace des compositions (composé des fractions massiques des espèces), agissant comme un attracteur pour les trajectoires dans cet espace. En d'autres termes, les fractions massiques des espèces peuvent être exprimées en fonction d'un ensemble réduit de quelques fractions massiques d'espèces "dominantes". Ces méthodes sont présentées ci-après, avec un accent sur les méthodes *Intrinsic Low-Dimensional Manifold* (ILDM) et *Flame Prolongation of ILDM* (FPI). Un paragraphe est dédié à la construction des variétés basées sur le concept de flammelettes. La problématique de la taille en mémoire nécessaire pour stocker les tables est ensuite abordée. D'autres méthodes, qui ne sont pas basées sur l'identification d'une variété mathématique, sont présentées à la fin de cette section.

Intrinsic Low-Dimensional Manifold (ILDM)

La méthode *Intrinsic Low-Dimensional Manifold* (ILDM) de Maas et Pope [144] a été l'un des précurseurs des méthodes de tabulation de la chimie.

La méthode ILDM consiste à étudier les valeurs propres et vecteurs propres de la matrice jacobienne J . Cette dernière est diagonalisée :

$$J = P\Lambda P^{-1} \quad (1.6)$$

où Λ est une matrice diagonale composée des N_{sp} valeurs propres λ_i de J , et P est une matrice composée de vecteurs propres. Si $\lambda_i < 0$ et $|\lambda_i| \gg 1$, le vecteur propre associé à λ_i atteint rapidement un

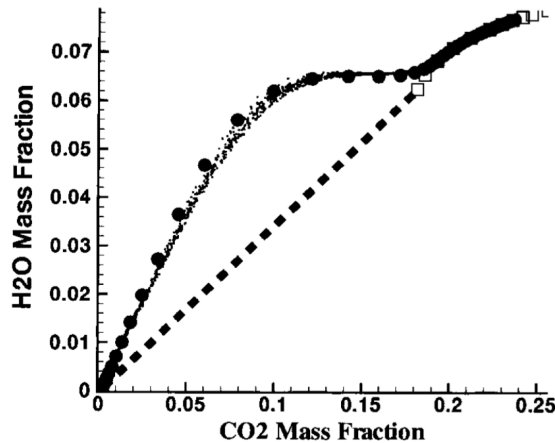


Figure 1.16 – Projection d’une flamme prémélangée turbulente CO/H₂/air (points noirs) dans l’espace ($Y_{\text{CO}_2}, Y_{\text{H}_2\text{O}}$), points constituant l’ILDM ($\square$, visibles dans le coin supérieur droit de la figure), flamme 1D prémélangée calculée avec la même composition des gaz frais ($\bullet$), et extrapolation linéaire de l’ILDM (ligne discontinue). Figure extraite de [74].

état stationnaire. N_f modes rapides et $N_s = N_{\text{sp}} - N_f$ modes lents sont ainsi identifiés. En formulant l’hypothèse que les N_f vecteur propres “rapides” sont à l’état stationnaire, un jeu de relations algébriques, que Maas et Pope nomment “*Intrinsic Low-Dimensional Manifold*”, est obtenu, permettant de déterminer les N_f espèces rapides à partir des N_s autres espèces. La tabulation de ces relations algébriques a conduit à un fort gain sur le temps de calcul dans [75] et [143].

Cette méthode se montre efficace à haute température, mais échoue à basse température, où le nombre N_s de modes lents augmente, si bien que les relations algébriques n’ont plus de solution. Une extrapolation linéaire de l’ILDM dans les zones de basses températures permet de contourner ce problème, mais conduit, dans certains cas, à des résultats erronés (Fig. 1.16). Ren *et al.* [182] proposent l’utilisation d’une variété basée sur la trajectoire des réactions, construite avec la méthode *Invariant Constrained Equilibrium-PreImage Curve* (ICE-PIC). L’intérêt d’une telle variété est qu’elle est définie même à basse température.

Le second inconvénient de la méthode ILDM, ainsi que de ICE-PIC, est que les phénomènes de transport, dont les échelles temporelles peuvent être plus courtes que les échelles chimiques lentes, ne sont pas pris en compte lors de la construction de la variété. La conséquence est que des points en dehors de l’ILDM peuvent être rencontrés dans les flammes réelles, notamment dans les flammes de diffusion, où les phénomènes de réaction chimique et de diffusion s’équilibrent. Ces effets d’écarts à l’ILDM ont été étudiés dans [181] et [183], où des améliorations de la méthode sont proposées. Bykov et Maas [26] ont également proposé d’inclure les effets de transport dans une extension de l’ILDM, appelé “*REaction-Diffusion Manifold*” (REDIM).

Génération de la table

La méthode ILDM se base sur des considérations mathématiques afin de construire la variété. Comme montré précédemment, cette méthode a été conçue pour décrire l’évolution de milieux homogènes, et ne permet pas la simulation des flammes de prémélange ou de diffusion.

Des méthodes basées sur une approche plus “physique” ont donc été proposées par plusieurs auteurs. Elles reposent sur la description de la flamme comme un ensemble de petits éléments de flammes, appelés “flammelettes”. Une collection de flammelettes est préalablement calculée avant la simulation et stockée dans une table. Elle doit contenir toutes les conditions de richesse, de température, de pression, d’étirement, etc, qui seront rencontrées au cours de la simulation. Les variables thermodynamiques

des flammelettes sont ensuite projetées sur un espace réduit, constitué des variables qui servent à paramétrer la table et qui seront transportées pendant la simulation. Le type de flammelettes utilisées est choisi en fonction du mode de combustion rencontré dans la simulation. Les trajectoires dans l'espace réduit, le nombre de dimensions qui composent ce dernier et les variables utilisées pour le paramétrer dépendent de la méthode utilisée :

- La table de la méthode *Flamelet Prolongation of ILDM* (FPI) de Gicquel *et al.* [74] est construite en tabulant des flammes laminaires mono-dimensionnelles prémélangées, en fonction d'une variable d'avancement c . Le second paramètre d'entrée de la table, la fraction de mélange Z , est ajouté en calculant des flammes pour plusieurs richesses différentes. Cette méthode est décrite avec plus de détails dans le paragraphe qui suit, et dans le chapitre 3. La méthode *Flamelet-Generated Manifold* (FGM) [221] est basée sur le même principe (en transportant c et l'enthalpie h).
- Des réacteurs homogènes peuvent être tabulés pour simuler des configurations où de l'auto-allumage est rencontré [58, 72]. Les variables c et Z sont utilisées pour paramétrer la table.
- Certains auteurs [151, 230] génèrent des tables à l'aide de flammes de diffusion pour simuler des flammes partiellement prémélangées. La variable d'avancement c est utilisée pour paramétrer chaque flammelette. Le second paramètre de la table peut être la fraction de mélange Z , l'étirement ou encore la dissipation scalaire [168].
- Ihme *et al.* [92, 94, 95] ont modifié la méthode FPVA (*Flamelet/Progress Variable Approach*) de Pierce et Moin [172] afin de traiter les phénomènes d'extinction et de ré-allumage. Des flammelettes de diffusion sont tabulées en fonction d'une fraction de mélange et d'une variable d'avancement modifiée.

Certains auteurs ont étudié la capacité d'une table générée avec un archétype de flamme donné à simuler des écoulements réactifs dans lesquels on rencontre d'autres modes de combustion. Par exemple, Fiorina *et al.* [64] ont tenté de simuler des flammes partiellement prémélangées et des flammes de diffusion à contre-courant avec FPI, en utilisant un indice de flamme modifié et des termes sources adaptés pour prendre en compte les zones de diffusion. Des études comparables ont également été effectuées avec FGM [230, 224]. Dans leur étude, Domingo *et al.* [49] utilisent la combinaison d'une table construite à partir de flammes prémélangées et d'une table basée sur de l'auto-allumage, pour simuler la flamme de Cabra *et al.* [27], où tous les régimes de combustion peuvent être rencontrés. Nguyen *et al.* [158] proposent de tabuler des flammes multi-dimensionnelles, paramétrées par une fraction de mélange, une variable d'avancement et trois taux de dissipation scalaire. Leur objectif est de permettre de simuler à la fois les flammes prémélangées, non-prémélangées et partiellement prémélangées, tout en prenant en compte les flux le long des iso-surfaces de la variable d'avancement et de la fraction de mélange.

Flame Prolongation of ILDM (FPI)

La méthode *Flame Prolongation of ILDM* (FPI) de Gicquel *et al.* [74] repose sur le calcul d'une collection de flammes laminaires mono-dimensionnelles de prémélange, effectué avant la simulation. Toutes les grandeurs thermochimiques correspondantes (fractions massiques des espèces, température, termes sources, capacités thermiques, etc) sont stockées dans une table, paramétrée par une variable d'avancement et une fraction de mélange. Au cours de la simulation, seules la variable d'avancement et la fraction de mélange sont transportées (en plus de la conservation de la masse, de la quantité de mouvement, et éventuellement, de l'énergie). Ces deux variables permettent ainsi d'accéder aux valeurs correspondantes de toutes les autres variables thermochimiques stockées dans la table. Le nom de la méthode FPI provient du fait qu'à température élevée, les points de l'ILDM de Maas et Pope sont confondus avec ceux de la table FPI, tandis qu'à basse température, la table FPI constitue une

prolongation bien plus efficace qu’une simple extrapolation linéaire de l’ILDM (Fig. 1.16).

Cette méthode, couplée à différents modèles de turbulence, a été appliquée avec succès tant en LES [47, 118, 179, 89, 6] qu’en RANS [225, 185]. De nombreuses modifications et améliorations ont été appliquées, afin de prendre en compte les effets de diffusion différentielle [133, 50], de permettre le calcul des NO_x [77, 161], ou encore de prendre en compte les pertes thermiques [223, 63]. Une extension de la méthode aux gaz réels a récemment été développée [170, 187].

Taille des tables

Lors de la phase de construction des tables, une dimension doit être ajoutée si un paramètre de l’écoulement, dont dépendent les données tabulées, est amené à varier lors de la simulation. Autrement dit, le nombre de dimensions que contient la table augmente avec la complexité de l’écoulement à simuler. Quelques-unes de ces situations sont données en exemple :

- Une dimension pour la pression doit être ajoutée, si cette grandeur n’est pas constante au cours de la simulation pour laquelle est conçue la table [58].
- Une dimension pour l’enthalpie est ajoutée lorsque des flammelettes non-adiabatiques sont utilisées pour générer la table [63].
- Si le système simulé comporte plusieurs entrées dont les compositions sont différentes, plusieurs fractions de mélange sont nécessaires pour paramétrer la table [87].

De plus, dans le cadre de la modélisation de sous-maille ou de la modélisation statistique de la combustion turbulente, la table est filtrée ou moyennée pour prendre en compte les effets de la turbulence, ce qui nécessite généralement l’ajout de dimensions supplémentaires.

Enfin, certaines directions doivent être discrétisées avec suffisamment de points, afin que le phénomène qu’elles représentent soit correctement décrit. Par exemple, la direction liée à la variable d’avancement doit être suffisamment discrétisée dans la table afin de capter les forts gradients des fractions massiques des espèces et de la température lors de la traversée du front de flamme [77].

Par conséquent, en fonction des besoins de l’utilisateur, la table requise pour effectuer la simulation peut contenir un nombre total de points extrêmement important. La taille nécessaire pour stocker de telles tables en mémoire peut ainsi être très élevée. Dans le cadre de l’utilisation de machines de calcul massivement parallèles, la table est chargée dans la mémoire RAM⁷ de chaque processeur, dont la quantité disponible reste aujourd’hui limitée, malgré l’évolution de la technologie informatique. En effet, même si les machines actuelles contiennent de plus en plus de mémoire (4 Go/cœur pour les noeuds fins de la machine Curie du CEA, 2 Go/cœur pour la machine Occigen du CINES), certaines architectures comme les machines *Blue Gene* d’IBM disposent toujours d’une quantité moins importante (1 Go/cœur pour la machine Turing de l’IDRIS). A titre de comparaison, une table à 4 dimensions avec 100 points dans chaque direction, contenant une seule variable tabulée représentée en double précision⁸, occupe environ 800 Mo en mémoire. En outre, une part conséquente de la mémoire est déjà réservée au stockage de toutes les grandeurs définies dans chaque cellule du maillage, et de toutes les autres données nécessaires à l’exécution du code de calcul, ce qui réduit d’autant plus l’espace disponible pour la table.

En plus des besoins importants en mémoire, le temps pour obtenir la valeur d’une variable tabulée à partir de la connaissance des variables d’entrées de la table augmente avec le nombre de dimensions de cette dernière, à cause des nombreux accès à la mémoire et des interpolations multi-dimensionnelles.

La taille des tables se pose donc comme un des principaux obstacles à l’utilisation des méthodes tabulées. Dans ce contexte, des alternatives au stockage “brut” des tables ont été envisagées.

7. *Random Access Memory*, appelée également “mémoire vive”.

8. Les nombres réels sont habituellement représentés en double précision dans les codes de calculs, ce qui correspond à environ 16 chiffres significatifs. Les réels en double précision sont généralement codés sur 8 octets.

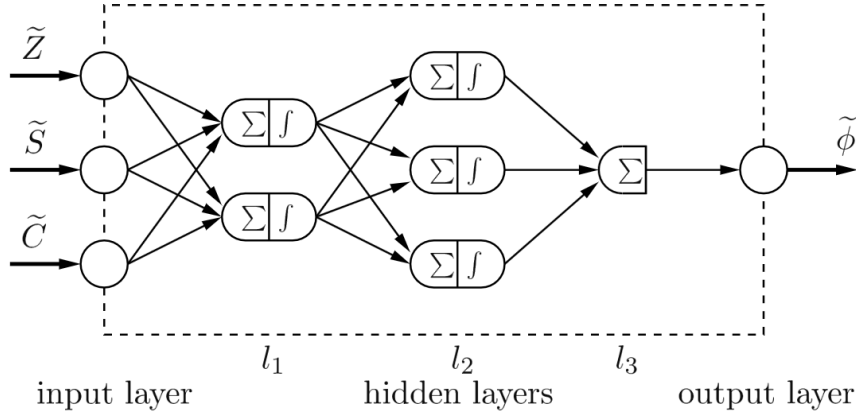


Figure 1.17 – Architecture d’un réseau neuronal utilisé pour stocker et reconstituer les données tabulées nécessaires à la méthode FPVA [96]. Dans le cas présenté ici, les variables utilisées pour paramétrer la table sont $\tilde{Z}$, $\tilde{S}$ et $\tilde{C}$. Un réseau neuronal différent est utilisé pour reconstruire chaque variable tabulée $\tilde{\Phi}$.

Ihme *et al.* [96] ont proposé de remplacer la table classique par un réseau neuronal, via la méthode OANN (Optimal Artificial Neural Networks) [93]. Avant la simulation, un “apprentissage” de la table initiale est effectué par le réseau neuronal, pour configurer les neurones. Au cours de la simulation, les variables d’entrées de la table sont combinées successivement dans chaque sous-couche de neurones du réseau, pour finalement aboutir à la valeur de la grandeur tabulée (Fig. 1.17). Un réseau neuronal différent est utilisé pour chaque grandeur tabulée. L’intérêt majeur de la méthode réside dans la quantité négligeable de mémoire requise pour stocker les données nécessaires au fonctionnement des neurones, à savoir moins d’un méga-octet, pour une précision similaire à celle d’une table classique pesant environ 500 Mo. Un inconvénient est cependant la durée de la reconstruction des grandeurs tabulées par les réseaux neuronaux, qui peut être jusqu’à 5 fois plus longue que les temps d’accès aux tables classiques.

Ribert *et al.* [186] ont constaté que les profils dans l’espace physique des fractions massiques et des termes sources des espèces, calculés dans plusieurs flammes prémélangées laminaire méthane/air générées à des pressions, richesses et températures des gaz frais différentes, ont une forme comparable, malgré des largeurs et maxima différents (Fig. 1.18). Ainsi, une fois normalisés convenablement, ces profils se superposent et sont quasiment confondus (Fig. 1.19). Cette propriété, dite d’auto-similarité, a également été mise en évidence pour des flammes non-adiabatiques [231] et dans des cas d’auto-allumage [189]. La méthode S2FT de Ribert *et al.* [186] met à profit l’auto-similarité des flammelettes pour réduire le nombre de dimensions des tables laminaire FPI et la taille globale de ces dernières, tout en conservant la même quantité d’informations. Cette méthode permet aussi de réduire le coût lié aux interpolations dans la table. Des tabulation auto-similaires ont également été envisagées pour la simulation de la combustion turbulente [228, 65].

Enfin, des techniques qualifiées de “repro-modeling” ont été utilisées pour réduire l’espace mémoire nécessaire au stockage de tables ILDM [25]. Ces techniques consistent à approximer les points de la table par un polynôme de degré élevé, dont les variables sont les paramètres de la table.

Autres méthodes de tabulation

L’approche *Hybrid Transported-Tabulated Chemistry* (HTTC), au centre de cette thèse, a récemment été proposée par Ribert *et al.* [188]. Cette méthode consiste à tabuler les espèces intermédiaires et radicalaires, présentes uniquement dans le front de flamme, pour réduire d’une part le nombre d’équa-

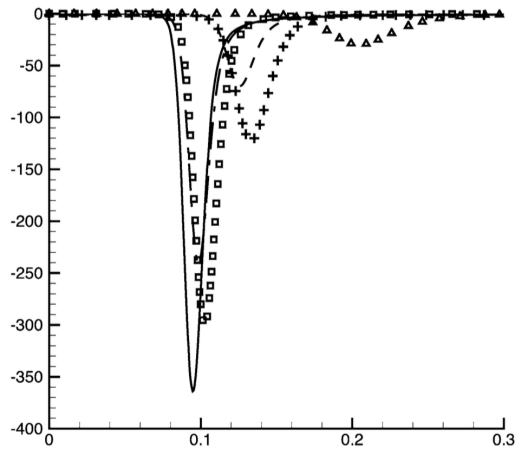


Figure 1.18 – Terme source de l'espèce O_2 dans des flammes méthane/air prémélangées laminares, exprimé dans l'espace physique [186]. Six profils apparaissent sur cette figure, correspondant chacun à une valeur donnée de la richesse, comprise entre 0.6 et 1.6.

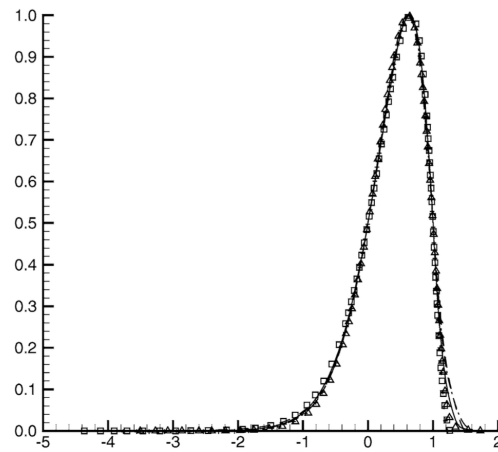


Figure 1.19 – Terme source réduit de la variable d'avancement en fonction de la variable d'avancement réduite, utilisés pour la génération de tables FPI auto-similaires (méthode S2FT de Ribert *et al.* [186]). Six profils apparaissent sur cette figure, correspondant chacun à une valeur donnée de la richesse, comprise entre 0.6 et 1.6.

tions de transport d'espèces à résoudre, et abaisser d'autre part la sévérité du critère de stabilité chimique requis pour le transport des espèces, diminuant radicalement le coût global de la simulation. Les espèces majoritaires, c'est-à-dire les réactifs et les produits de la combustion, sont quant à elles transportées, permettant une indépendance totale vis-à-vis de la table en dehors des zones réactives. Elles sont en outre utilisées pour calculer les grandeurs servant à paramétrer la table, à savoir une variable de progrès et une fraction de mélange. La problématique de la taille de la table est contournée grâce aux propriétés d'auto-similarité des profils stockés dans les tables HTTC.

Harstad et Bellan [84, 85, 86], puis Kourdis et Bellan [114, 115], ont proposé une approche similaire permettant d'inclure des cinétiques détaillées dans la simulation de la combustion de combustibles lourds (n-heptane, iso-octane, n-decane, et n-dodecane). Seul un set réduit de 20 espèces "légères", identiques pour tous les combustibles traités, est transporté. Les autres espèces du mécanisme (les espèces lourdes) ne sont pas transportées. Les équations de transport des espèces légères sont décomposées pour faire apparaître des termes correspondant à l'influence des espèces lourdes sur les espèces légères. Ces termes sont judicieusement normalisés puis tabulés en fonction de la pression, de la température des gaz frais, de la richesse et d'une variable de progrès basée sur la température, en mettant à profit leur caractère auto-similaire. L'avantage de cette méthode est qu'elle permet l'utilisation de mécanismes réactionnels très lourds, contenant plusieurs milliers d'espèces et de réactions chimiques, les termes tabulés étant générés avec des réacteurs 0D rapides à calculer. La résolution des équations de transport des espèces légères nécessite l'utilisation de méthodes numériques implicites (contenues dans la librairie FCVODE), du fait de la présence de certains radicaux parmi les espèces légères (CH , CH_2). Cette méthode a été appliquée à des cas d'auto-allumage et au calcul de flammes 1D laminares, et n'a pas encore été mise en œuvre dans des simulations multi-dimensionnelles.

Certains auteurs ont constaté qu'au cours de la simulation multi-espèces d'un écoulement réactif, seule une petite partie de l'espace des compositions, dont chaque dimension est définie par la fraction massique d'une espèce du mélange, est réellement parcourue. Ainsi, il est probable qu'un point de cet espace, rencontré pour la première fois à une position spatiale et à un temps donné de la simulation, soit à nouveau rencontré à une position différente à un temps postérieur. Partant de cette observation, Pope [177] a proposé la méthode ISAT (*In-Situ Adaptive Tabulation*). Si un point de l'espace des compositions est rencontré pour la première fois au cours de la simulation, les équations habituelles de transport des espèces sont résolues directement, et le nouveau point obtenu est stocké dans une table construite en direct. Lorsqu'un point se trouvant à proximité d'un point déjà calculé dans l'espace des compositions est rencontré, l'avancement temporel du vecteur des espèces n'est pas effectué avec les équations de transport, mais en interpolant entre les points tabulés, ce qui permet des gains de temps très importants. En pratique, le vecteur des compositions à la fin d'une itération est calculé à l'aide de relations algébriques faisant intervenir le vecteur initial et le pas de temps. La méthode PRISM (*Piecewise Reusable Implementation of Solution Mapping*) [215, 10] fonctionne avec un principe semblable. Ces méthodes diffèrent des méthodes de tabulation présentées précédemment, car elles ne sont pas basées sur l'utilisation d'une librairie de flammelettes. L'efficacité de ces méthodes décroît lorsqu'elles sont mises en œuvre sur des architectures massivement parallèles.

1.3 Objectifs de la thèse

Dans les sections précédentes, la nécessité d'utiliser un mécanisme cinétique détaillé pour modéliser les phénomènes complexes qui ont lieu au sein des écoulements réactifs a été montrée. Dans le cas des combustibles légers, comme l'hydrogène et le méthane, ces mécanismes sont constitués de quelques dizaines d'espèces et de réactions chimiques. Le coût associé au transport du mécanisme complet reste modéré, et la résolution d'une équation de transport pour chaque espèce peut alors être envisagée.

La raideur du système d'équation peut être traitée avec des méthodes numériques adaptées, plus ou moins complexes et coûteuses.

Cependant, les mécanismes réactionnels conçus pour modéliser la combustion de carburants lourds, comme ceux que l'on peut trouver dans les domaines de l'automobile et de l'aéronautique, contiennent quant à eux des milliers d'espèces et de réactions, et les systèmes chimiques associés sont encore plus raides. Une approche de tabulation ou de réduction de la chimie est alors indispensable pour réduire le coût global de la simulation. Toutefois, une grande partie des mécanismes squelettiques issus des procédures de réduction contiennent encore trop d'espèces pour être utilisables tels quels dans les codes de CFD dans le cas des carburants lourds [141, 43]. Par ailleurs, les tables basées sur des flammelettes ne peuvent pas être générées avec des mécanismes détaillés, ces derniers étant trop lourds même pour les codes 1D [103, 106]. Des mécanismes squelettiques, parfois appelés "mécanismes détaillés" par abus de langage, sont alors utilisés en pratique, et les méthodes de réduction et de tabulation sont souvent utilisées conjointement. Ce dernier point montre que la modélisation de la combustion d'hydrocarbures lourds reste un sujet d'étude à approfondir.

Dans ce contexte, l'approche *Hybrid Transported-Tabulated Chemistry* (HTTC) apparaît comme une alternative intéressante, puisqu'elle permet a priori de traiter des mécanismes cinétiques détaillés pour un coût modéré.

Dans leur étude, Ribert *et al.* [188] ont développé les fondements de la méthode HTTC, et l'ont implémentée dans le code mono-dimensionnel REGATH (REal GAs THERmodynamics) [28], puis validée lors du calcul de plusieurs flammes 1D méthane/air différentes : adiabatiques et non-adiabatiques, laminaires stationnaires et étirées instationnaires.

L'objectif de cette thèse est de poursuivre le développement de HTTC et de l'étendre au formalisme DNS/LES. Les caractéristiques principales de HTTC peuvent en effet être des atouts majeurs dans les simulations DNS et LES :

- La tabulation des espèces radicalaires élimine la nécessité de résoudre des équations de transport raides. Des schémas numériques entièrement explicites, relativement simples et légers, peuvent alors être utilisés pour l'intégration temporelle, sans problèmes de stabilité ou de pas de temps excessivement faibles. La simulation ne sera donc plus limitée par le pas de temps chimique.
- La tabulation est effectuée en tirant profit de la propriété d'auto-similarité des profils de fraction massiques des espèces radicalaires et intermédiaires. La taille de la table obtenue est ainsi réduite, et les temps d'accès à la table sont modérés. Par ailleurs, la méthode HTTC est relativement simple et ne nécessite aucune opération particulièrement coûteuse en temps de calcul. Ce point est particulièrement intéressant dans le cadre de l'intégration de HTTC dans un code léger, tel qu'un code compressible (pas de résolution d'équations de Poisson comme pour un code bas-Mach), structuré (accès rapide aux éléments du maillage), et entièrement explicite (pas besoin de méthodes semi-implicites complexes et coûteuses).
- Le critère employé pour séparer les espèces transportées et tabulées permet d'isoler un ensemble d'espèces transportées quasiment identique quel que soit le mécanisme réactionnel et le combustible considérés. Autrement dit, si la lecture des espèces tabulées dans la table et le calcul des taux de réactions sont suffisamment optimisés, le temps de calcul que requiert HTTC sera peu dépendant du nombre d'espèces et de réactions total, et pourra même être du même ordre de grandeur pour la simulation d'une flamme de méthane ou de kérosène.

A terme, l'intérêt de HTTC est de rendre possible l'utilisation de chimies détaillées dans des LES de systèmes complets.

Lors de cette thèse, le code DNS/LES structuré SiTCom-B, développé au laboratoire CORIA, a été utilisé. Ce code résout les équations de Navier-Stokes compressibles, de façon entièrement explicite, sur des grilles structurées. Deux solveurs sont disponibles : le solveur multi-espèces de chimie entièrement

transportée, et le solveur de chimie tabulée FPI.

Dans un premier temps, des optimisations ont été apportées au solveur multi-espèces, afin d'accélérer le calcul des taux de réactions et le calcul des propriétés de diffusion, qui limitent habituellement les performances des codes de calcul lorsque des mécanismes cinétiques volumineux sont utilisés. Ce point a également été traité avec attention pour assurer les performances du solveur HTTC, ce dernier utilisant les mêmes routines de calcul de la diffusion et de la chimie que le solveur multi-espèces de chimie transportée.

Un générateur de tables HTTC automatique a ensuite été développé. A partir d'une librairie de flammes 1D de prémélange calculées dans le code REGATH, ce programme sélectionne les espèces à tabuler, puis construit les profils auto-similaires et les stocke dans une table adaptée à SiTCom-B. La méthode HTTC a été implémentée dans SiTCom-B, et l'écriture du solveur a été validée sur des flammes laminaires 1D méthane/air. Les propriétés d'auto-similarité des profils de fractions massiques des espèces rencontrées dans des mécanismes réactionnels plus complexes, conçus pour modéliser la combustion d'un substitut de kérosène avec formation des NOx, ont été étudiées. Le gain de performances obtenu a ensuite été évalué sur des flammes laminaires 1D mettant en jeu ces mécanismes.

L'extension de HTTC à des simulations multi-dimensionnelles a été étudiée à travers la simulation numérique directe 2D de flammes triples de méthane, permettant notamment d'analyser les effets des gradients de fraction de mélange, et d'investiguer la prolongation des tables en dehors du domaine de flammabilité. Les flammes obtenues avec le solveur HTTC sont comparées à celles obtenues avec le solveur de chimie entièrement transportée d'une part et le solveur de chimie tabulée FPI d'autre part.

1.4 Plan du manuscrit

Ce manuscrit, qui s'attache à répondre aux objectifs énoncés précédemment, est organisé de la manière suivante :

Chapitre 2 : Équations de l'aérothermochimie

En plus d'exposer un certain nombre de lois physiques utilisées pendant cette thèse, ce chapitre rappelle les équations de Navier-Stokes, et donne quelques éléments sur leur résolution numérique.

Chapitre 3 : Modélisation de la chimie

Après avoir présenté les spécificités de la chimie de la combustion du kérosène et de la production des NO_x, ce chapitre détaille l'évaluation des termes sources, puis présente les différentes améliorations et optimisations apportées aux solveurs multi-espèces et tabulé du code DNS/LES SiTCom-B, utilisé au cours de cette thèse.

Chapitre 4 : Hybrid Transported-Tabulated Chemistry

Ce chapitre commence par exposer le principe de fonctionnement de la méthode HTTC, en montrant notamment les propriétés d'auto-similarité des profils des espèces intermédiaires dans les flammes d'hydrocarbures. L'implémentation de HTTC dans le code SiTCom-B est ensuite détaillée. Une attention particulière est portée sur la construction de la table. Enfin, des flammes mono-dimensionnelles de méthane et de kérosène sont calculées avec des mécanismes cinétiques prenant en compte les NO_x. Les résultats fournis par le solveur HTTC sont confrontés aux flammes de références, calculées avec le code de flammes 1D REGATH.

Chapitre 5 : Simulation of methane-air edge flames

Dans ce chapitre, l'impact de forts gradients de fraction de mélange sur la méthode HTTC est in-

vestigé, à travers la simulation numérique directe de flammes triples laminaires bi-dimensionnelles méthane/air. De tels gradients sont connus pour mettre en défaut les méthodes de tabulation classique. Les flammes stationnaires obtenues avec HTTC sont donc comparées à celles fournies par le modèle FPI, mais aussi aux résultats de référence, donnés par le solveur de chimie transportée. La prolongation de la table en dehors du domaine de flammabilité est étudiée.

Chapitre 6 : Conclusion and perspectives

Ce dernier chapitre apporte une conclusion générale à cette thèse, et propose des perspectives pour les futurs développements de la méthode HTTC.

Équations de l'aérothermochimie

Sommaire

2.1	Description d'un mélange multi-espèces	39
2.1.1	Concentrations, fractions massiques et molaires	39
2.1.2	Richesse et fraction de mélange	40
2.2	Equations de Navier-Stokes	41
2.2.1	Conservation de la quantité de mouvement	41
2.2.2	Conservation de la masse et des espèces	42
2.2.3	Conservation de l'énergie	42
2.3	Modélisation des phénomènes de diffusion	44
2.3.1	Nombres caractéristiques	44
2.3.2	Approche <i>Mixture-Averaged</i>	45
2.3.3	Approche simplifiée	46
2.3.4	Importance de la modélisation de la diffusion des espèces	47
2.4	Equations d'état	48

Ce chapitre présente les grandeurs et équations qui constituent les fondements de la simulation numérique des écoulements réactifs. Dans un premier temps, les grandeurs qui permettent de décrire un écoulement multi-espèces sont présentées. Les équations de transport qui traduisent l'évolution spatio-temporelle d'un écoulement réactif sont ensuite détaillées. Les techniques de modélisation des phénomènes de transport et la notion d'équation d'état sont finalement abordées.

2.1 Description d'un mélange multi-espèces

2.1.1 Concentrations, fractions massiques et molaires

On considère un écoulement réactif contenant un nombre N_{sp} d'espèces chimiques. Cette section définit des grandeurs permettant de quantifier la masse et les proportions de chacune de ces espèces dans le mélange.

La fraction molaire X_k d'une espèce k est le rapport entre le nombre de moles n_k d'espèce k sur le nombre de moles total n contenu dans un volume de contrôle V :

$$X_k = \frac{n_k}{n} \quad (2.1)$$

La fraction massique Y_k de l'espèce k est définie de façon analogue :

$$Y_k = \frac{m_k}{m} \quad (2.2)$$

où m_k est la masse d'espèce k et m est la masse totale de matière contenue dans le volume V . Les fractions molaires et massiques sont liées par la relation :

$$Y_k = \frac{W_k}{W} X_k \quad (2.3)$$

où W_k est la masse molaire de l'espèce k , et W est la masse molaire moyenne du mélange, qui peut être calculée à partir des masses molaires et des fractions molaires des espèces :

$$W = \sum_{k=1}^{N_{sp}} X_k W_k \quad (2.4)$$

On peut également définir la concentration molaire $[X_k]$ de l'espèce k dans le mélange :

$$[X_k] = \rho \frac{Y_k}{W_k} \quad (2.5)$$

avec ρ la masse volumique du mélange, définie par :

$$\rho = \frac{m}{V} \quad (2.6)$$

On définit également la constante des gaz parfaits réduite r , à partir de la constante des gaz parfaits R et de la masse molaire du mélange W :

$$r = \frac{R}{W} \quad (2.7)$$

avec $R = 8.3144621 \text{ J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$.

2.1.2 Richesse et fraction de mélange

Le comportement d'une flamme dépend fortement de la concentration locale en combustible et en oxydant. Il convient alors de définir des grandeurs permettant de quantifier les proportions entre le combustible et l'oxydant dans le mélange.

La richesse ϕ indique si un mélange contient un excédent d'oxydant (on parle alors de mélange "pauvre"), un excédent de combustible (mélange "riche"), ou si les proportions de combustible et d'oxydant sont telles qu'ils pourraient, théoriquement, être entièrement consommés à travers la flamme (mélange "stœchiométrique"). Il est possible de la définir dans les gaz frais à partir de la fraction massique d'oxydant Y_{Ox} et de combustible Y_F :

$$\phi = \frac{\frac{Y_F}{Y_{Ox}}}{\left(\frac{Y_F}{Y_{Ox}}\right)_{st}} \quad (2.8)$$

où l'indice "st" correspond à la valeur stœchiométrique. En l'absence de combustible, $\phi = 0$, tandis qu'en l'absence d'oxydant, la valeur de ϕ tend vers l'infini. A la stœchiométrie, ϕ prend la valeur de 1.

Ainsi définie, la richesse ϕ n'est définie ni dans les zones réactives de l'écoulement ni dans les gaz brûlés. La fraction de mélange Z est donc introduite. C'est un scalaire passif, qui tient compte du mélange entre combustible et oxydant, indépendamment de la combustion. Il est possible de lui affecter une valeur nulle dans l'oxydant pur, et une valeur de 1 dans le combustible pur. Elle peut être transportée à partir des entrées du domaine de calcul, en utilisant l'équation de conservation suivante :

$$\frac{\partial \rho Z}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i Z) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_Z \frac{\partial Z}{\partial x_i} \right) \quad (2.9)$$

où D_Z est le coefficient de diffusion de Z .

Il est également possible de calculer Z localement en utilisant une combinaison linéaire des fractions

massiques des espèces. La même combinaison linéaire des termes sources de ces espèces doit être nulle, afin de s'assurer que Z est bien un scalaire passif. Ainsi, dans le cas d'une combustion avec de l'air, il est possible de calculer Z à partir de l'espèce N_2 , quand elle est supposée non-réactive (si elle ne réagit pas pour former des oxydes d'azote) :

$$Z_{N_2} = \frac{Y_{N_2,air} - Y_{N_2}}{Y_{N_2,air}} \quad (2.10)$$

où $Y_{N_2,air}$ correspond à la fraction massique de N_2 dans l'air pur.

Une autre définition, proposée par Bilger *et al.* [13], est basée sur les fractions atomiques des atomes de carbone Y_C , des atomes d'hydrogène Y_H et des atomes d'oxygène Y_O :

$$Z_{Bilger} = \frac{2(Y_C - Y_{C,2})/W_C + (Y_H - Y_{H,2})/(2W_H) - (Y_O - Y_{O,2})/W_O}{2(Y_{C,1} - Y_{C,2})/W_C + (Y_{H,1} - Y_{H,2})/(2W_H) - (Y_{O,1} - Y_{O,2})/W_O} \quad (2.11)$$

où l'indice 1 correspond à l'entrée de combustible et l'indice 2 correspond à l'entrée d'oxydant. La fraction atomique de carbone est calculée comme suit :

$$Y_C = \sum_{k=1}^{N_{sp}} W_C \nu_{C,k} \frac{Y_k}{W_k} \quad (2.12)$$

où $\nu_{C,k}$ est le nombre d'atomes de carbone dans une molécule d'espèce k . Notons que Y_C est bien un scalaire passif, puisque la quantité totale d'atomes de carbone est conservée. Les fractions atomiques en hydrogène et en oxygène sont calculées de manière similaire.

2.2 Equations de Navier-Stokes

Dans un fluide vérifiant l'hypothèse de milieu continu, toute grandeur extensive G est conservée. En d'autres termes, une variation de G dans un volume de contrôle ne peut s'expliquer que par une production ou une destruction de G dans ce volume et par un échange de G avec l'extérieur du volume. En particulier, lorsque l'on simule un écoulement réactif, les variables à déterminer sont le vecteur vitesse u , la masse volumique ρ , la pression p , et le vecteur Y , qui contient les N_{sp} fractions massiques Y_k . Ces variables, dites primitives, sont suffisantes pour calculer n'importe quelle autre grandeur de l'écoulement. En pratique, les lois de conservation sont souvent exprimées à l'aide des variables dites conservatives, à savoir ρu , ρY et ρE . Ces variables correspondent respectivement au produit de ρ par u , Y , et l'énergie totale non-chimique E , définie par la suite. Les équations traduisant la conservation de ces grandeurs sont détaillées dans les sections suivantes. Elles sont basées sur les travaux de Claude Louis Henri Marie Navier [157] et George Gabriel Stokes [210], datant de la première moitié du 19^{ème} siècle.

2.2.1 Conservation de la quantité de mouvement

La conservation de la quantité de mouvement ρu dans la direction j s'écrit :

$$\frac{\partial \rho u_j}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i u_j) = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_i} + \rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k f_{k,j} \quad (2.13)$$

où la notation d'Einstein est utilisée. Le tenseur σ_{ij} s'exprime par :

$$\sigma_{ij} = \tau_{ij} - p\delta_{ij} \quad (2.14)$$

$f_{k,j}$ est une force volumique agissant sur l'espèce k dans la direction j . Par la suite, aucune force volumique n'agit sur l'écoulement, et $f_{k,j} = 0 \forall k, \forall j$. Dans le cas d'un fluide newtonien, le tenseur des contraintes visqueuses s'écrit :

$$\tau_{ij} = \left(\kappa - \frac{2}{3}\mu \right) \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{ij} + \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.15)$$

où μ est la viscosité dynamique du mélange, et δ_{ij} est le symbole de Kronecker ($\delta_{ij} = 1$ si $i = j$, 0 sinon). κ est la viscosité volumique. Elle est supposée nulle par la suite.

2.2.2 Conservation de la masse et des espèces

Chaque espèce k présente dans l'écoulement est soumise à l'équation de conservation suivante :

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho(u_i + V_{k,i})Y_k) = \dot{\omega}_k \quad (2.16)$$

où $V_{k,i}$ est la vitesse de diffusion de l'espèce k dans la direction i . La diffusion est liée au gradient de fraction massique, mais également aux gradients de température (effet Soret) et de pression (effet baro-diffusif). $\dot{\omega}_k$ est un terme source dû à la destruction ou à la production de l'espèce k , provoqué par des réactions chimiques. On a, par définition :

$$\sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k V_{k,i} = 0 \quad (2.17a)$$

$$\sum_{k=1}^{N_{sp}} \dot{\omega}_k = 0 \quad (2.17b)$$

On retrouve donc, en additionnant toutes les Eq. (2.16) écrites pour chaque $k \in [1, N_{sp}]$, la conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (2.18)$$

2.2.3 Conservation de l'énergie

L'énergie totale non-chimique E est définie comme la somme de l'énergie sensible e_s et de l'énergie cinétique e_c :

$$E = e_s + e_c \quad (2.19)$$

avec

$$e_c = \frac{1}{2} u_i u_i \quad (2.20)$$

et

$$e_s = \int_{T_0}^T c_v(T') dT' - \frac{RT_0}{W} \quad (2.21)$$

où T_0 est la température de référence, généralement prise à $T_0 = 298.15$ K. c_v est la capacité calorifique massique à volume constant de l'écoulement. Elle est la somme de la capacité calorifique à volume constant $c_{v,k}$ de chacune des espèces qui composent cet écoulement, pondérées par leur fraction

massique :

$$c_v = \sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k c_{v,k} \quad (2.22)$$

De même, on peut définir l'enthalpie sensible h_s du mélange en fonction de la capacité calorifique à pression constante c_p :

$$h_s = \int_{T_0}^T c_p(T') dT' \quad (2.23)$$

avec

$$c_p = \sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k c_{p,k} \quad (2.24)$$

En ajoutant l'énergie "chimique" (qui correspond à la somme des enthalpies de formation des espèces du mélange pondérées par leur fraction massique) à l'énergie totale non-chimique E , on obtient l'énergie e_t , dite "totale chimique" :

$$e_t = E + \sum_{k=1}^{N_{sp}} \Delta h_{f,k}^o Y_k \quad (2.25)$$

La conservation de l'énergie totale non-chimique E s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho E}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i E) = \dot{\omega}_E + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_{s,k} Y_k V_{k,i} \right) \\ + \frac{\partial}{\partial x_j} (\sigma_{ij} u_i) + \dot{\mathcal{Q}} + \rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k f_{k,i} (u_i + V_{k,i}) \end{aligned} \quad (2.26)$$

où λ est la conductivité thermique du mélange, $h_{s,k}$ est l'enthalpie sensible de l'espèce k , et $\dot{\mathcal{Q}}$ une puissance thermique échangée, par exemple par rayonnement ou avec un laser. Dans la suite de ce manuscrit, $\dot{\mathcal{Q}} = 0$. Les effets Soret et Dufour sont négligés. Le dernier terme de l'Eq. (2.26) est la puissance produite par une éventuelle force volumique agissant sur l'espèce k (par exemple provoquée par un champ électrique).

$\dot{\omega}_E$ est le terme source correspondant à l'énergie dégagée par la combustion. Il est calculé à partir des termes sources $\dot{\omega}_k$ de chacune des espèces k de l'écoulement et de leur enthalpie de formation $\Delta h_{f,k}^o$:

$$\dot{\omega}_E = - \sum_{k=1}^{N_{sp}} \Delta h_{f,k}^o \dot{\omega}_k \quad (2.27)$$

Il est également possible d'écrire une équation de conservation pour e_t , similaire à celle écrite pour E (Eq. (2.26)) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho e_t}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i e_t) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i} \right) \\ + \frac{\partial}{\partial x_j} (\sigma_{ij} u_i) + \dot{\mathcal{Q}} + \rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k f_{k,i} (u_i + V_{k,i}) \end{aligned} \quad (2.28)$$

On peut cette fois noter l'absence de terme source, l'énergie chimique étant déjà contenue dans e_t . De plus, le terme diffusif lié à la diffusion des espèces dans le mélange ne s'écrit plus avec les enthalpies

sensibles $h_{s,k}$ des espèces, mais avec les enthalpies h_k , définies par :

$$h_k = h_{s,k} + \Delta h_{f,k}^o \quad (2.29)$$

2.3 Modélisation des phénomènes de diffusion

Cette section détaille maintenant le calcul des propriétés de diffusion des variables transportées dans le mélange, à savoir :

- la viscosité dynamique μ , pour la quantité de mouvement (Eq. (2.13))
- la conductivité thermique λ , pour l'énergie (Eq. (2.26) et (2.28))
- les N_{sp} vitesses de diffusion V_k des espèces (Eq. (2.43))

Pour les calculer, trois approches sont envisageables, présentées ici de la plus complexe à la plus simplifiée :

- calcul par résolution de systèmes linéaires de taille $N_{sp} \times N_{sp}$, dont les paramètres sont les fractions molaires et les propriétés physiques des espèces pures à l'échelle atomique (moment dipolaire, diamètre de collision, etc) [46, 235]. Cette approche, dite "Multicomponents", permet de déterminer de manière exacte μ , λ et V_k , en incluant notamment les effets Soret et Dufour. Elle est cependant extrêmement coûteuse et difficilement applicable [60] dans un code de CFD, et ne sera pas détaillée.
- calcul à partir des propriétés des espèces pures, en utilisant des formules semi-empiriques et en formulant certaines hypothèses. Cette approche intermédiaire, dite "*Mixture-Averaged*", a été employée au cours de cette thèse.
- calcul avec un modèle de diffusion simplifié, en supposant que la diffusion des espèces et de l'énergie est proportionnelle à μ , calculé avec la loi de Sutherland.

2.3.1 Nombres caractéristiques

Dans un premier temps, des nombres adimensionnés usuels sont rappelés. Ils correspondent à différents rapports des coefficients de diffusion.

On commence par définir la viscosité cinématique ν :

$$\nu = \frac{\mu}{\rho} \quad (2.30)$$

ainsi que la diffusivité thermique a_T :

$$a_T = \frac{\lambda}{\rho c_p} \quad (2.31)$$

Le nombre de Schmidt Sc_k compare la diffusion de la quantité de mouvement et la diffusion moléculaire de l'espèce k :

$$Sc_k = \frac{\nu}{D_k} \quad (2.32)$$

Le nombre de Prandtl Pr correspond au rapport de la viscosité cinématique sur la diffusivité thermique :

$$Pr = \frac{\nu}{a_T} = \frac{\mu c_p}{\lambda} \quad (2.33)$$

Enfin, le nombre de Lewis Le_k est le rapport entre la diffusivité thermique et la diffusion de l'espèce k :

$$Le_k = \frac{a_T}{D_k} = \frac{\lambda}{\rho c_p D_k} \quad (2.34)$$

Notons que le nombre de Lewis peut s'exprimer en fonction des nombres de Prandtl et de Schmidt :

$$Le_k = \frac{Sc_k}{Pr} \quad (2.35)$$

2.3.2 Approche *Mixture-Averaged*

Les propriétés macroscopiques des espèces pures sont déterminées à partir de leur propriétés physiques à l'échelle atomique (moment dipolaire, diamètre de collision, etc), issues de la théorie cinétique des gaz. La viscosité μ_k de l'espèce k pure est par exemple donnée par [90] :

$$\mu_k = \frac{5}{16} \frac{\sqrt{\pi W_k k_B T}}{\pi \sigma_k^2 \Omega^{(2,2)*}} \quad (2.36)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, σ_k est le diamètre de collision de Lennard-Jones, et $\Omega^{(2,2)*}$ est une intégrale de collision. Des formules comparables sont utilisées pour calculer les conductivités thermiques λ_k des espèces pures, et les coefficients de diffusion binaire D_{jk} , qui traduisent la diffusion d'une espèce j dans un mélange binaire constitué uniquement des espèces j et k .

Des lois de mélange sont ensuite utilisées pour calculer les propriétés globales de l'écoulement. Parmi les lois disponibles dans la littérature, sont présentées ici celles utilisées au cours de cette thèse. La formule semi-empirique de Wilke [234], modifiée par Bird *et al.* [14], est utilisée pour calculer la viscosité dynamique μ du mélange :

$$\mu = \sum_{k=1}^{N_{sp}} \frac{X_k}{\sum_{j=1}^{N_{sp}} X_j \Phi_{jk}} \mu_k \quad (2.37)$$

avec

$$\Phi_{jk} = \frac{1}{\sqrt{8}} \left(1 + \frac{W_k}{W_j} \right)^{-\frac{1}{2}} \left(1 + \left(\frac{\mu_k}{\mu_j} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{W_j}{W_k} \right)^{\frac{1}{4}} \right)^2 \quad (2.38)$$

De manière similaire, une combinaison de moyennes des conductivités λ_k des espèces pures est utilisée pour calculer la conductivité thermique λ du mélange [148] :

$$\lambda = \frac{1}{2} \left(\sum_{k=1}^{N_{sp}} X_k \lambda_k + \frac{1}{\sum_{k=1}^{N_{sp}} \frac{X_k}{\lambda_k}} \right) \quad (2.39)$$

Pour le calcul des vitesses de diffusion, une approximation au premier ordre de l'approche "multicomposants", développée par Hirschfelder et Curtiss [90], est utilisée. La vitesse de diffusion de l'espèce k est maintenant simplement exprimée par :

$$V_k = -D_k \frac{\nabla X_k}{X_k} \quad (2.40)$$

où D_k , le coefficient de diffusion moyen de l'espèce k dans le mélange, est introduit. L'équation (2.16) devient donc, en supposant également l'absence de forces volumiques :

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i Y_k) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_i} \right) + \dot{\omega}_k \quad (2.41)$$

Exprimée ainsi, l'équation de conservation (2.41) ne garantit plus la conservation de la masse. En effet, la somme sur toutes les espèce k n'est pas forcément égale à l'équation (2.18) de conservation de la masse, à cause de l'approximation effectuée sur la vitesse de diffusion des espèces. Coffee *et al.* [36] ont donc proposé d'introduire une vitesse de correction V_i^c dans l'équation (2.41) pour rétablir la conservation de la masse :

$$V_i^c = \sum_{k=1}^{N_{sp}} D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_i} \quad (2.42)$$

Ainsi en pratique, l'équation suivante doit être résolue pour la conservation des espèces :

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho (u_i + V_i^c) Y_k) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_i} \right) + \dot{\omega}_k \quad (2.43)$$

Les coefficients D_k sont déduits des coefficients de diffusion binaire [14] :

$$D_k = \frac{\sum_{\substack{j=1 \\ j \neq k}}^{N_{sp}} X_j W_j}{W \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq k}}^{N_{sp}} \frac{X_j + \varepsilon}{D_{jk}}} \quad (2.44)$$

où ε est ajouté pour éviter que le dénominateur ne s'annule, dans le cas où on tend localement vers un écoulement constitué d'une espèce pure. En pratique, ε dépend de la précision machine. Numériquement, il est défini comme la plus petite quantité vérifiant $1 + \varepsilon = 1$.

Une hypothèse supplémentaire peut également être appliquée, consistant à fixer les nombres de Lewis, soit à une valeur différente pour chaque espèce, soit à 1 pour toutes les espèces. Le calcul des D_k est alors simplifié, car les N_{sp}^2 coefficients de diffusion binaires ne sont alors plus requis :

$$D_k = \frac{\lambda}{\rho C_p Le_k} \quad (2.45)$$

2.3.3 Approche simplifiée

Une méthode moins coûteuse que l'approche "Mixture-Averaged" est parfois utilisée, notamment dans les codes de calcul non-réactifs, où les fractions massiques des espèces composant l'écoulement ne sont pas connues, ou dans le cas d'écoulements fortement turbulents, où une telle précision n'est pas nécessaire.

Dans un premier temps, la loi empirique de Sutherland [212] est utilisée pour déterminer la valeur de la viscosité μ :

$$\mu = \mu_0 \left(\frac{T}{T_0} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{T_0 + S}{T + S} \quad (2.46)$$

Les paramètres μ_0 , T_0 et S dépendent du mélange considéré. Par exemple, pour de l'air, $\mu_0 = 1.715 \times 10^{-5} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$, $T_0 = 273.15 \text{ K}$ et $S = 110.4 \text{ K}$.

La conductivité thermique λ est ensuite déduite de μ et de C_p , en fixant le nombre de Prandtl :

$$\lambda = \frac{\mu C_p}{Pr} \quad (2.47)$$

Pour les gaz, le nombre de Prandtl vaut usuellement $Pr \approx 0.72$.

Enfin, les coefficients D_k sont calculés à partir du nombre de Lewis Le (habituellement avec $Le = 1$

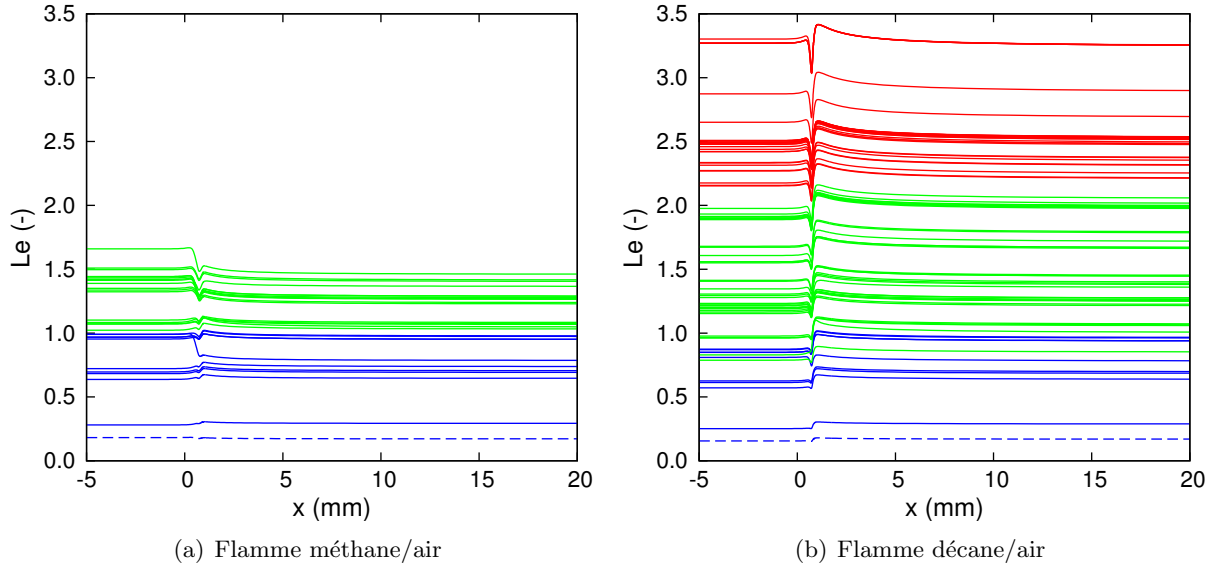


Figure 2.1 – Nombre de Lewis (calculé avec l’Eq. (2.34)) des espèces chimiques rencontrées dans des flammes 1D stœchiométriques à pression atmosphérique de méthane et de décane. En rouge : espèces lourdes ($W_k > 70$ g/mol), en vert : espèces de masse molaire moyenne ($20 \leq W_k \leq 70$ g/mol), en bleu : espèces légères ($W_k < 20$ g/mol). Ligne bleue discontinue : espèce H. Le front de flamme est positionné à une valeur de x légèrement supérieure à 0 mm. Le code REGATH a été utilisé, avec $T_u = 300$ K pour le méthane et $T_u = 500$ K pour le décane.

pour toutes les espèces) et de la conductivité thermique λ avec l’Eq. (2.45) (ou de façon équivalente, à partir du nombre de Schmidt Sc et de la viscosité μ).

2.3.4 Importance de la modélisation de la diffusion des espèces

Le phénomène de diffusion différentielle implique que chaque espèce diffuse dans le mélange à une vitesse différente de celle des autres espèces. Les espèces les plus petites et les plus légères sont celles qui se déplacent le plus aisément dans le mélange. Leur coefficient de diffusion est élevé et leur nombre de Lewis est inférieur à l’unité, ce qui traduit une diffusion plus grande que celle de la chaleur. Au contraire, les molécules lourdes ont un nombre de Lewis supérieur à l’unité. Le nombre de Lewis des espèces présentes dans les flammes d’hydrocarbures varie ainsi sur un large intervalle de valeurs (Fig. 2.1), allant de 0.2 pour l’espèce H, qui est l’atome le plus léger de la classification périodique des éléments, à plus de 3 pour des espèces issues du décane, qui est un combustible lourd.

Une attention particulière doit donc être apportée à la modélisation de la diffusion des espèces. Les approches présentées précédemment (multicomposants [Mod#1], *mixture-averaged* [Mod#2 et Mod#3] et approche simplifiée [Mod#4]) sont testées dans le code REGATH, à travers 4 modèles différents, détaillés dans le tableau 2.1. Le modèle *Mod#1*, dont le niveau de complexité est le plus grand parmi les 4 modèles, est pris comme référence. Les flammes simulées dans un code 1D montrent que le choix du modèle de diffusion influe faiblement sur la composition et la température des gaz brûlés (Fig. 2.2), ces dernières dépendant davantage de la composition et de la température des gaz frais. Les approches *Mod#3* et *Mod#4*, qui font l’hypothèse d’un nombre de Lewis unitaire, sont en revanche incapables de prédire la bonne vitesse de flamme (Fig. 2.3), et fournissent de plus des résultats similaires, alors que μ et λ sont calculés différemment. Une modélisation correcte du terme diffusif de l’équation de transport des espèces apparaît donc comme essentielle. L’approximation de Hirschfelder et Curtiss, utilisée dans le modèle *Mod#2*, semble adaptée, et sera utilisée par la suite

Nom	Diffusion des espèces	Calcul de μ	Calcul de λ
Mod#1	Détermination des V_k par résolution d'un système (approche multicomposants)	Eq. (2.37)	Eq. (2.39)
Mod#2	Calcul des D_k via Eq. (2.44)	Eq. (2.37)	Eq. (2.39)
Mod#3	Calcul des D_k via Eq. (2.45) avec $Le = 1$	Eq. (2.37)	Eq. (2.39)
Mod#4	Calcul des D_k via Eq. (2.45) avec $Le = 1$	Eq. (2.46)	Eq. (2.47)

Tableau 2.1 – Caractéristiques des modèles de diffusion comparés.

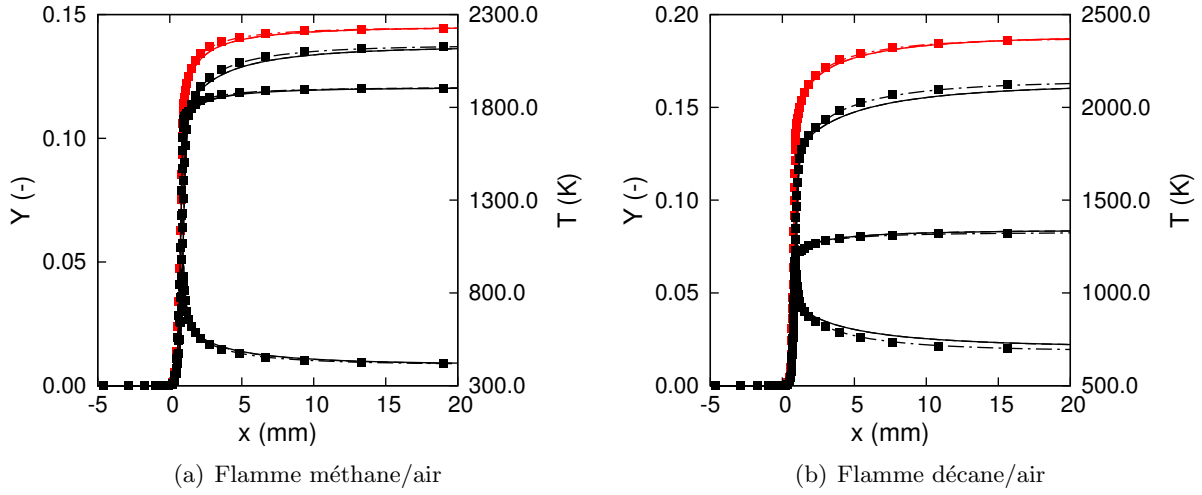


Figure 2.2 – Température (en rouge) et fractions massiques (en noir) des produits de combustion majoritaires (H_2O , CO et CO_2) dans des flammes stœchiométriques 1D méthane/air et décane/air, à pression atmosphérique, calculées dans REGATH. — modèle de diffusion *Mod#1*, --- modèle de diffusion *Mod#2*, -.- modèle de diffusion *Mod#3*, ■ modèle de diffusion simplifié *Mod#4*.

dans SiTCom-B.

2.4 Equations d'état

Dans un gaz, la pression P , la température T et la masse volumique ρ ne peuvent pas évoluer de façon indépendante. L'influence de la variation d'une de ces trois grandeurs sur les deux autres est caractérisée par une relation appelée "équation d'état". Cette dernière permet de fermer le système d'équations de conservation présenté dans la section précédente.

Lorsque le gaz est supposé parfait, l'équation d'état suivante est utilisée :

$$P = \rho r T \quad (2.48)$$

Dans certaines conditions "extrêmes" de température et de pression (par exemple en régime supercritique), l'hypothèse de gaz parfait n'est plus valide (on parle alors de gaz "réel"). L'équation (2.48) doit être remplacée par une équation d'état plus complexe. Les équations dites "cubiques", proposées par exemple par Peng et Robinson [162] ou par Soave, Redlich et Kwong [206], sont couramment utilisées.

Dans cette thèse, les valeurs de pression et de température rencontrées permettent de faire l'hypothèse des gaz parfaits et l'équation d'état correspondante (2.48) est retenue.

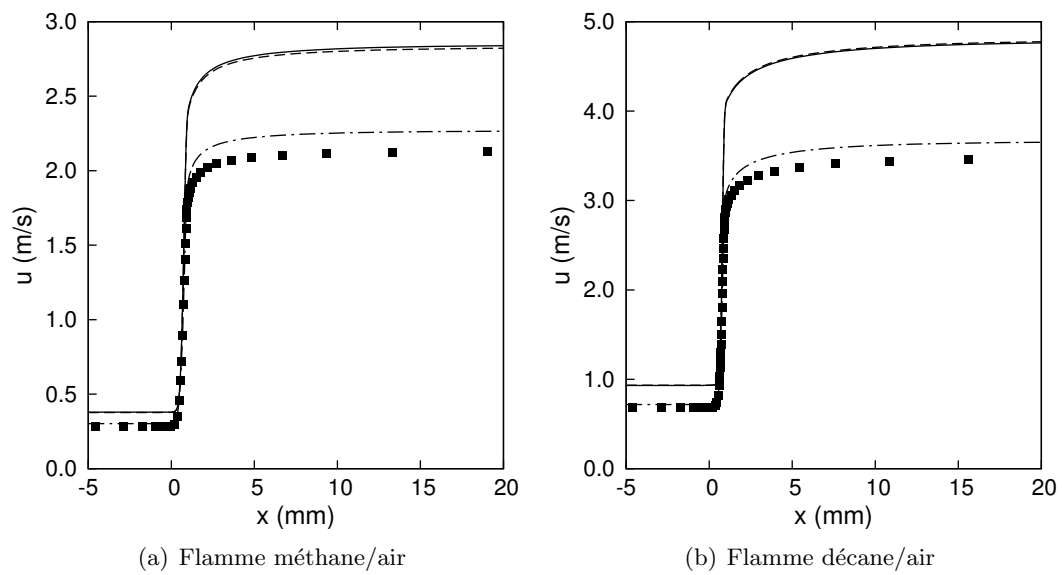


Figure 2.3 – Vitesse de l'écoulement dans des flammes stœchiométriques 1D méthane/air et décane/air, à pression atmosphérique, calculées dans REGATH. — modèle de diffusion *Mod#1*, --- modèle de diffusion *Mod#2*, - · - modèle de diffusion *Mod#3*, ■ modèle de diffusion simplifié *Mod#4*.

Sommaire

3.1	Cinétique chimique	52
3.1.1	Combustion de combustibles lourds	52
3.1.1.1	Composition du kérosène	52
3.1.1.2	Structure de flamme	54
3.1.2	Chimie des NO_x	55
3.1.2.1	NO_x thermiques	55
3.1.2.2	NO_x “précoces”	56
3.1.2.3	NO_x issus de l’azote du combustible	56
3.1.2.4	Profils de fractions massiques des NO_x	57
3.1.3	Mécanismes cinétiques utilisés dans cette étude	57
3.2	Calcul des termes source des espèces	61
3.2.1	Taux de réaction et constantes de vitesse	63
3.2.2	Réactions <i>three-body</i>	64
3.2.3	Réactions <i>fall-off</i>	64
3.3	Structures canoniques de flammes	65
3.3.1	Réacteurs parfaitement prémélangés et auto-allumage	66
3.3.2	Flammes de pré-mélange	66
3.3.3	Flammes de diffusion	69
3.3.4	Flammes partiellement prémélangées	69
3.3.5	Indice de flamme	70
3.4	Modélisation dans SiTCom-B	72
3.4.1	Caractéristiques principales du code	72
3.4.1.1	Généralités	72
3.4.1.2	Méthode des volumes finis	73
3.4.1.3	Avancement temporel explicite	74
3.4.2	Solveur de chimie transportée	74
3.4.2.1	Lecture et interprétation du mécanisme cinétique	74
3.4.2.2	Equations de transport et calcul des propriétés thermodynamiques	76
3.4.2.3	Calcul du pas de temps	76
3.4.3	Solveur de chimie tabulée FPI	78
3.4.3.1	Equations de transport	78
3.4.3.2	Calcul du pas de temps	79
3.4.3.3	Génération de la table	79
3.4.3.4	Calcul de la température	80
3.4.3.5	Prise en compte des effets de diffusion différentielle	84
3.4.4	Optimisation du code	90
3.4.4.1	Analyse des performances de la version non-optimisée du solveur multi-espèces transportées	91

3.4.4.2	Optimisation du calcul des variables thermodynamiques et des constantes de vitesse des réactions chimiques	93
3.4.4.3	Optimisations liées au choix du compilateur	100
3.4.4.4	Analyse des performances parallèles	101

Ce troisième chapitre a pour objet les techniques de modélisation de la chimie utilisées lors de la simulation numérique d'un écoulement réactif. Dans la première section, des notions sur les mécanismes chimiques décrivant la combustion des hydrocarbures lourds et la formation des oxydes d'azote sont apportées, et les schémas cinétiques utilisés au cours de cette thèse sont présentés. La seconde section permet de détailler le calcul des termes sources présents dans les équations de transport des espèces, et la notion de structure de flamme est abordée dans la troisième section. Ce chapitre s'achève par la description du code SiTCom-B ainsi que des modèles de combustion mis en œuvre au cours de cette thèse. Un accent particulier est mis sur les améliorations et optimisations qui ont été apportées au code, notamment aux solveurs multi-espèces et FPI.

3.1 Cinétique chimique

La combustion est la réaction chimique d'oxydation d'un mélange de combustible F et d'oxydant O , conduisant à un dégagement de chaleur et à la formation de produits de combustion :



où ν'_F et ν'_O sont les coefficients stœchiométriques du combustible et de l'oxydant, respectivement. D'autres espèces diluantes, n'apparaissant pas dans l'Eq. (3.1), peuvent également être présentes dans les réactifs (N_2 , H_2O , etc.).

Dans le domaine de l'automobile et de l'aviation, les combustibles employés sont, dans la majorité des cas, des mélanges contenant une grande partie d'hydrocarbures de formule chimique brute $C_n H_m$, et l'oxydant est le dioxygène O_2 contenu dans l'air atmosphérique. Le nombre d'atomes de carbone n est généralement élevé ($n > 7$), la masse molaire est importante (de l'ordre de 100 g/mol) et les combustibles sont sous forme liquide dans des conditions de température et de pression standard (25°C et 1 bar). Cette dernière propriété permet un stockage aisé et sûr, et conduit à des fortes densités énergétiques volumiques de ces combustibles, expliquant leur usage intensif dans le domaine des transports. La figure 3.1 compare le pouvoir calorifique inférieur¹(PCI) de quelques combustibles usuels. La densité énergétique volumique du kérosène et du carburant diesel est largement supérieure à celle de combustibles gazeux comme l'hydrogène et le méthane.

Des simulations de flammes méthane/air ont été effectuées pendant cette thèse. La combustion de substituts de kérosène a également été étudiée. La section suivante présente la composition moyenne du kérosène aéronautique, et la structure de flamme associée à la combustion d'un hydrocarbure lourd.

3.1.1 Combustion de combustibles lourds

3.1.1.1 Composition du kérosène

Le kérosène est un carburant utilisé principalement dans le domaine de l'aviation. C'est un mélange complexe de plusieurs centaines d'hydrocarbures, contenant notamment des alcanes linéaires, des alcanes cycliques, et des composés aromatiques et polycycliques [43]. Plusieurs types de kérosène

1. Le Pouvoir Calorifique Inférieur (PCI) d'un combustible est son enthalpie de combustion (valeur absolue de la différence entre l'enthalpie des réactifs et celle des produits de la combustion), l'eau étant sous forme gazeuse. Sa valeur est généralement définie à une température de 25°C et à une pression de 1 bar. [116]

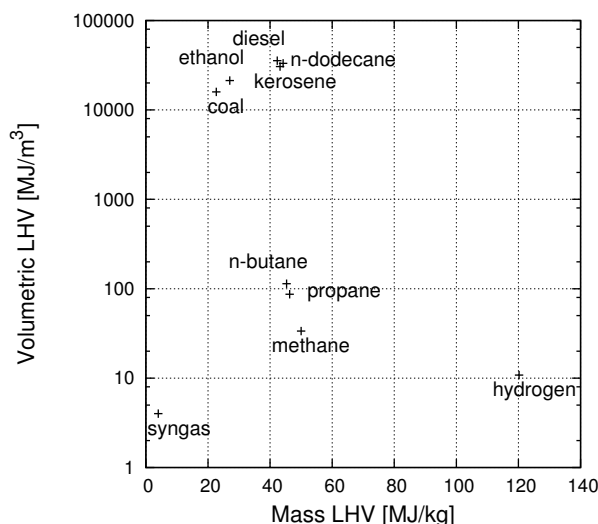


Figure 3.1 – Pouvoir calorifique inférieur (ou *Lower Heating Value*) massique et volumique de combustibles usuels [217, 97, 193], à une pression de 1 bar et une température de 25°C.

Famille chimique	Fraction volumique (%)	
	Moyenne [56]	Jet A-1 [81]
Aromatiques	10-20	18
Alcanes cycliques	20-30	20
Paraffines	50-65	60
Oléfines	-	2

Tableau 3.1 – Composition de kérosènes commerciaux (moyenne et Jet A-1).

sont utilisés dans l’aéronautique, chacun ayant une appellation commerciale (Jet A, Jet A-1, AVTUR, TR0, ...) et une composition particulière. Le tableau 3.1 donne la composition moyenne des kérosènes commerciaux et celle du Jet A-1.

De plus, la composition d’un kérosène commercial donné est susceptible de varier au cours du temps, d’un achat à l’autre. Ces conditions rendent difficile l’étude de la combustion de ce carburant. L’utilisation de mélanges dont la composition est reproductible et définie précisément, mais dont les propriétés physico-chimiques sont similaires au kérosène à étudier, est donc nécessaire. En outre, pour des raisons de simplicité, le nombre d’espèces chimiques contenues dans ces mélanges doit être limitée. De tels carburants de substitution (*surrogate* en anglais) ont été étudiés et peuvent être trouvés dans la littérature [43]. Par la suite, deux d’entre eux seront utilisés. Le premier est composé uniquement de n-décane. Le second est un mélange proposé par Guéret *et al.* [80] (Tab. 3.2). Par la suite, les réactions chimiques liées à la combustion de ces mélanges seront décrites par le mécanisme cinétique de Luche *et al.* [141], décrit plus loin dans ce chapitre.

Nom	Formule chimique	Fraction massique
n-décane	$C_{10}H_{22}$	0.74
n-propylbenzène	C_9H_{12}	0.15
propylcyclohexane	C_9H_{18}	0.11

Tableau 3.2 – Composition du kérosène de substitution de Guéret *et al.* [80]

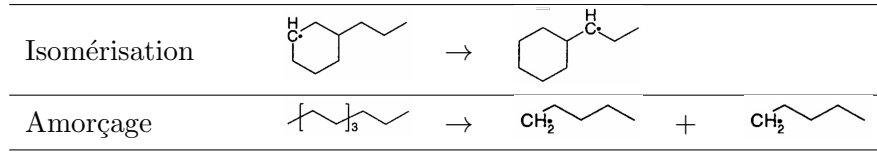


Tableau 3.3 – Exemple de réactions d’isomérisation et de β -scission intervenant durant la décomposition des réactifs qui constituent le kérosène.

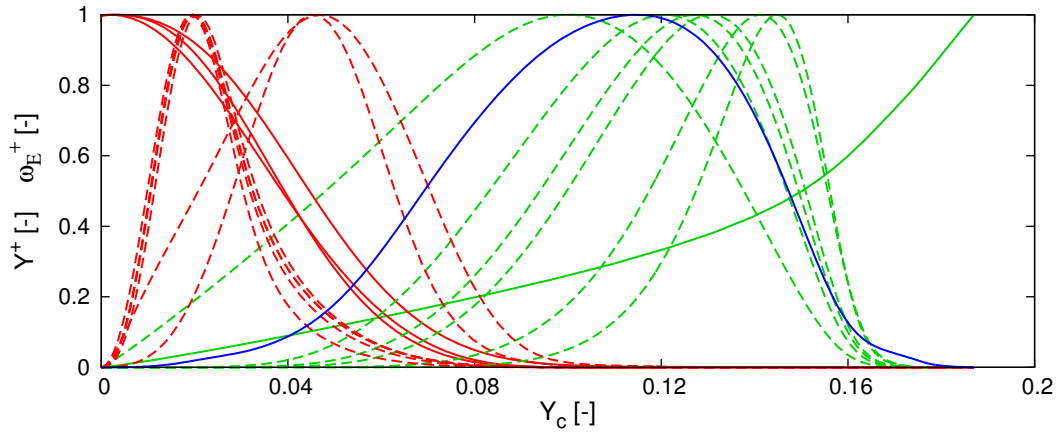


Figure 3.2 – Structure d’une flamme de kérosène. Fractions massiques réduites $Y^+ = Y/\max(Y)$ (— réactifs composant le carburant, --- espèces intermédiaires C_9 et C_{10} , — CO_2 , --- espèces intermédiaires C_1 et C_2) et terme source de chaleur réduit $\omega_E^+ = \omega_E/\max(\omega_E)$ (—), en fonction de la variable d’avancement $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$. Le code REGATH a été utilisé avec le mécanisme réactionnel de Luche *et al.* [141].

3.1.1.2 Structure de flamme

Le kérosène est composé d’espèces lourdes (9 à 10 atomes de carbone dans les mélanges étudiés). Une fois chauffés par la diffusion de la chaleur en amont du front de flamme, ceux-ci se décomposent en espèces plus légères, en partie par le biais de phénomènes de pyrolyse, faisant intervenir notamment des réactions d’isomérisation, de β -scission et d’amorçage [140] (par exemple, rupture d’une liaison C-C, cf. Tab. 3.3). Lorsque des radicaux assez légers sont formés, ceux-ci réagissent pour contribuer à la combustion proprement dite. Ainsi, lorsque la valeur maximale du dégagement de chaleur est atteinte, la majorité des espèces C_9 et C_{10} (espèces contenant respectivement 9 et 10 atomes de carbone), dont les réactifs initiaux, ont disparu, laissant place aux espèces légères C_1 et C_2 . La production des produits principaux de la combustion (CO , CO_2 , H_2O , ...) se déroule également en plus grande partie lorsque les espèces C_9 et C_{10} ont été consommées. Ce phénomène est illustré par la figure 3.2, qui montre une structure de flamme pré-mélangée décane/air mono-dimensionnelle. Cette structure de flamme est à comparer avec celle d’une flamme de méthane, dans les mêmes conditions de température et de pression, où la consommation du combustible est progressive à travers la flamme, et mène directement à la production des espèces C_1 et C_2 et au dégagement de chaleur (Fig. 3.3).

La combustion d’hydrocarbures dans de l’air conduit inévitablement à la formation d’oxydes d’azote (NO_x). La section suivante aborde leurs mécanismes de formation et présente des profils de fractions massiques dans des flammes mono-dimensionnelles.

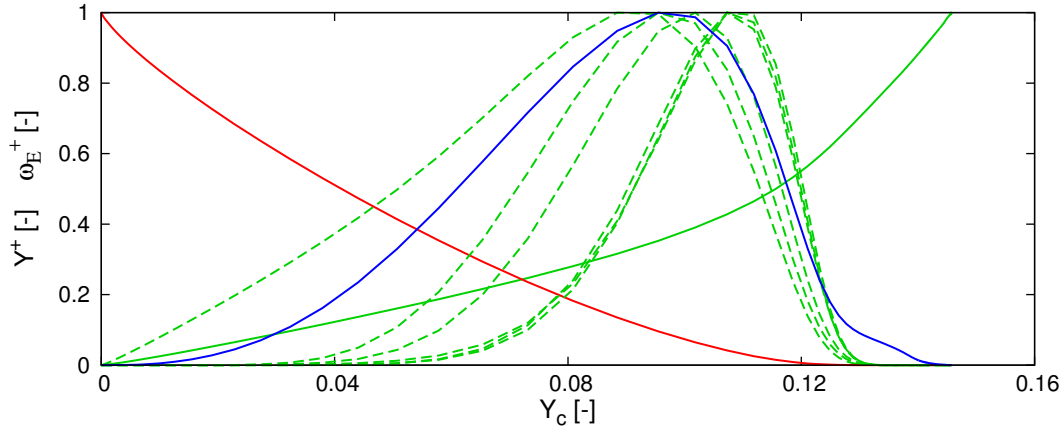


Figure 3.3 – Structure d’une flamme de méthane. Fractions massiques réduites $Y^+ = Y / \max(Y)$ (— CH_4 , — CO_2 , - - - espèces intermédiaires C_1 et C_2) et terme source de chaleur réduit $\dot{\omega}_E^+ = \dot{\omega}_E / \max(\dot{\omega}_E)$ (—), en fonction de la variable d’avancement $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$. Le code REGATH a été utilisé avec le mécanisme réactionnel de Lindstedt[129].

3.1.2 Chimie des NO_x

Lors de la combustion des hydrocarbures avec de l’air, le diazote de l’air réagit chimiquement avec l’oxygène contenu dans l’air et dans le combustible, conduisant à la formation d’espèces polluantes azotées. Parmi ces espèces on trouve notamment l’ammoniac NH_3 , et les oxydes d’azote, à savoir NO , NO_2 , N_2O , N_2O_3 , N_2O_4 et N_2O_5 , regroupés sous le terme générique de “ NO_x ”. L’espèce NO est celle qui est produite en plus grande quantité, c’est pourquoi elle a fait l’objet de nombreuses études numériques [71, 94, 77, 226, 112, 161, 131]. Cette espèce est également la cible de plusieurs normes sur la pollution dans les secteurs aéronautique et automobile, comme évoqué précédemment dans le premier chapitre. L’espèce NO_2 est soumise à ces mêmes normes.

Plusieurs voies chimiques sont à l’origine de la formation des NO_x :

- la voie dite “thermique” (*thermal* NO_x), causée par les fortes températures dans les gaz brûlés.
- la voie de formation “précoce” (*prompt* NO_x) dans le front de flamme.
- la formation de NO_x à partir de l’azote directement présent dans le combustible (*fuel* NO_x).

Ces voies chimiques ont fait l’objet de très nombreuses investigations théoriques et expérimentales [237, 145, 45, 83, 190, 152, 38, 20] et sont désormais bien connues et modélisées dans les mécanismes cinétiques. Elles sont présentées très brièvement ci-après.

3.1.2.1 NO_x thermiques

Cette voie chimique est à l’origine de la formation de la plus grande partie du NO total, via le mécanisme de Zel’Dovich [242, 45] :



Le mécanisme de Zel’Dovich est complété par un jeu de réactions faisant intervenir N_2O [145, 237] :





L'importance de ce mécanisme a été mise en évidence par Correa [38] pour la combustion pauvre dans les chambres aéronautiques. L'espèce N_2O a quant à elle une durée de vie courte dans les gaz brûlés, et est formée principalement par les réactions suivantes [190] :



N_2O est ensuite rapidement consommé et converti à nouveau en N_2 , expliquant sa faible concentration par rapport à NO :



Toutes les réactions qui viennent d'être présentées sont très lentes et ont lieu majoritairement dans les gaz brûlés. Les échelles spatiales et temporelles de ces réactions sont supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celles des réactions conduisant à la consommation des réactifs et au dégagement de chaleur dans le front de flamme.

3.1.2.2 NO_x "précoces"

Cette voie est associée à des réactions chimiques se produisant dans le front de flamme et faisant intervenir des radicaux, tels que CH . Le mécanisme de Fenimore [62] tient compte de la dégradation de N_2 par les espèces radicalaires présentes dans le front de flamme :



La concentration de CH dans le front de flamme augmentant avec la richesse, ce mécanisme intervient de façon plus importante dans les flammes riches.

L'espèce NO_2 est principalement produite dans la flamme et découle de la transformation de NO [152] :



Cette espèce est rapidement convertie en NO en présence d'une forte concentration de radicaux, ce qui explique sa faible concentration par rapport à NO .

3.1.2.3 NO_x issus de l'azote du combustible

La libération des atomes d'azote contenus dans le combustible, provoqué par la décomposition de ce dernier dans la flamme, entraîne des réactions chimiques avec les espèces radicalaires [45]. Ce processus dépend notamment du nombre d'atomes d'azote présents dans le combustible. Cette voie chimique ne sera pas détaillée, car les combustibles mis en jeu dans cette thèse ne contiennent pas d'azote (méthane, iso-octane et kérosène, ce dernier étant assimilé à des mélanges ne contenant pas d'azote).

Combustible/Ox.	Nom/Auteur	N_{sp}		N_r	
		Total	dont NOx	Rév.	Non rév.
Méthane/Air	Lindstedt[129]	29	-	141	-
Méthane/Air	GRI 3.0 [205]	53	17	325	-
Kérosène/Air	Luche <i>et al.</i> [141]	91	17	-	991
Iso-octane/Air	Curran <i>et al.</i> [42]	857	-	3598	-

Tableau 3.4 – Mécanismes cinétiques étudiés au cours de cette thèse pour la combustion de différents combustibles. Le nombre d'espèces contenues dans chaque mécanisme est noté N_{sp} et le nombre de réactions (réversibles ou pas) est noté N_r .

3.1.2.4 Profils de fractions massiques des NO_x

Les différentes voies chimiques de formation des NO_x se produisent donc simultanément dans la flamme et dans les gaz brûlés issus de la flamme. Les espèces azotées (toutes les espèces contenant au moins un atome d'azote, dont les NO_x) présentent ainsi des profils de fraction massique particuliers. La forme des profils permet d'identifier quatre catégories :

1. le diazote N_2 contenu dans l'air est consommé dans le front de flamme et dans les gaz brûlés. Lorsque le nombre de Lewis est supposé unitaire, la fraction massique de N_2 diminue de façon monotone (Fig. 3.4(a)). Toutefois, lorsque les effets de diffusion différentielle sont pris en compte, une diminution suivie d'une augmentation de la fraction massique sont constatées dans le front de flamme.
2. certaines espèces sont formées quasiment exclusivement par les mécanismes thermiques qui ont lieu dans les gaz brûlés, et la quantité de ces espèces produites dans le front de flamme par les mécanismes précoces est nulle ou négligeable. Les profils de ces espèces présentent une évolution monotone et très lente dans les gaz brûlés (Fig. 3.4(b)). C'est par exemple le cas des espèces NO et NO_2 à la stœchiométrie.
3. à l'inverse, certaines espèces (CN , $HCNN$, $HCNO$) réagissent exclusivement avec les radicaux présents dans la flamme. Ils sont donc localement produits puis consommés dans le front de flamme et présentent une concentration nulle dans les gaz brûlés (Fig. 3.4(c)).
4. toutes les autres espèces azotées (dont NH_3 , HCN et HNO) associent ces deux types de comportement, en réagissant à la fois sur des échelles spatio-temporelles courtes dans le front de flamme et longues dans les gaz brûlés. Leurs profils de fraction massique ne sont donc pas monotones et peuvent présenter un pic dans le front de flamme suivi d'une évolution lente dans les gaz brûlés (Fig. 3.4(d)).

Les effets de diffusion différentielle sont uniquement visibles pour des valeurs de $Y_c < 0.14$, *i.e.* dans le front de flamme, où l'hypothèse $Le_k = 1, \forall k \in [1, N_{sp}]$ conduit à des erreurs sur les fractions massiques. Cependant, dans les gaz brûlés ($Y_c > 0.14$) la quantité $Y_{CO} + Y_{CO_2}$ a atteint sa valeur d'équilibre et reste constante. Dans cette zone se produisent majoritairement des réactions chimiques lentes faisant intervenir les espèces azotées, et l'hypothèse de nombre de Lewis unitaire n'a pas d'impact visible.

3.1.3 Mécanismes cinétiques utilisés dans cette étude

Au cours de cette thèse, plusieurs mécanismes cinétiques ont été utilisés pour simuler la combustion de différents combustibles (Tab. 3.4).

Dans le chapitre 4, des flammes 1D méthane/air ont été calculées pour valider l'implémentation du solveur HTTC dans le code SiTCom-B. Le méthane a également été choisi pour la simulation des

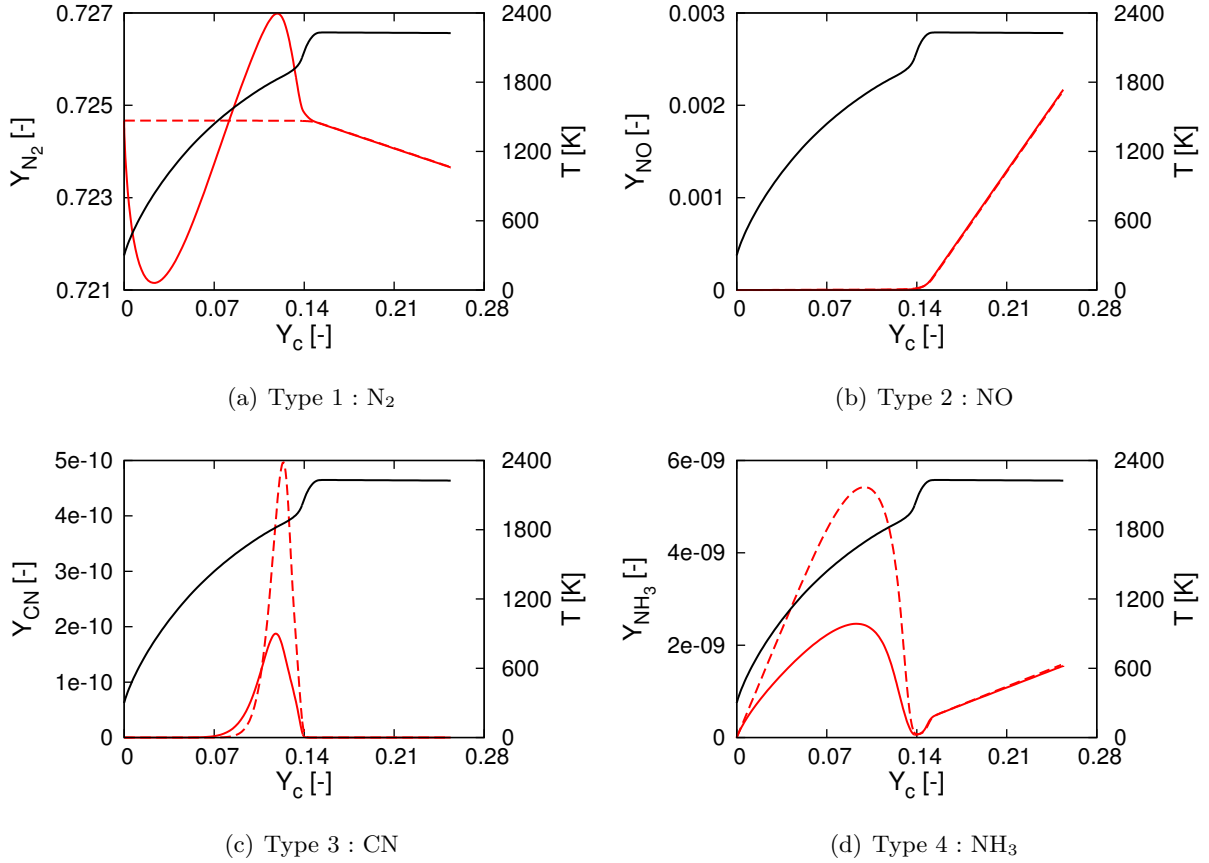


Figure 3.4 – Différentes formes des profils de fractions massiques des espèces azotées dans une flamme 1D laminaire méthane/air, en fonction de la variable d'avancement $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2} + 50 \times (Y_{NO} + Y_{NO_2} + Y_{N_2O})$. — : fraction massique calculées avec Le variable, - - : fraction massiques calculées avec $Le = 1$ pour toutes les espèces, — : température calculée avec Le variable. Le calcul a été effectué avec le code REGATH, en utilisant le mécanisme de Lindstedt complété avec les réactions chimiques des espèces azotées issues du mécanisme GRI 3.0 (présenté dans la section 3.1.3).

Nom	N_{sp}		N_r	
	Total	dont NOx	Total	dont NOx
Lindstedt <i>et al.</i> original	29	-	141	-
GRI 3.0	53	17	325	106
Lindstedt + NOx du GRI 3.0	46	17	247	106
Lindstedt + NOx réduit	33	4	150	9

Tableau 3.5 – Mécanismes cinétiques utilisés au cours de cette thèse pour la combustion méthane/air.

NO thermique		NO ₂ précoce [152]
Mécanisme de Zel'Dovich [242, 45]	Mécanisme du N ₂ O [145, 237]	
$N_2 + O \rightleftharpoons NO + N$	$N_2 + O + M \rightleftharpoons N_2O + M$	$NO + HO_2 \rightleftharpoons NO_2 + OH$
$N + O_2 \rightleftharpoons NO + O$	$N_2O + O \rightleftharpoons NO + NO$	$NO_2 + H \rightleftharpoons NO + OH$
$N + OH \rightleftharpoons NO + H$	$N_2O + O \rightleftharpoons N_2 + O_2$	$NO_2 + O \rightleftharpoons NO + O_2$

Tableau 3.6 – Mécanisme cinétique réduit pour la production de NO et NO₂ utilisé au cours de cette thèse.

flammes triples présentées dans le chapitre 5, car les réactions chimiques associées à sa combustion mettent en jeu un nombre raisonnable d'espèces intermédiaires, et induisent une raideur modérée dans les systèmes d'équations à résoudre. Par conséquent, les simulations effectuées avec le solveur de chimie détaillée, qui ont servies de référence pour la comparaison avec le solveur HTTC, ont nécessité un temps de calcul élevé mais acceptable, ce qui n'aurait probablement pas été le cas avec un combustible plus lourd.

Le mécanisme cinétique détaillé de Lindstedt *et al.* [129], utilisé dans la publication initiale de Ribert *et al.* [188] sur HTTC, a été repris et utilisé pour simuler toutes les flammes méthane/air présentées dans ce manuscrit. Ce schéma cinétique ne prenant pas en compte la formation des NO_x, le mécanisme des espèces azotées issu du GRI 3.0 [205] lui a été ajouté pour former un nouveau schéma cinétique étendu (Tab. 3.5). Un second mécanisme a également été construit en ajoutant au schéma cinétique initial de Lindstedt un mécanisme réduit pour les NO_x, basé sur les réactions chimiques présentées précédemment (Tab. 3.6). Ce mécanisme fait intervenir seulement 5 espèces azotées (N₂, N, NO, NO₂ et N₂O), et combine des réactions pour la production du NO par voie thermique (Eq. (3.2) et (3.3)) à des réactions pour la production du NO₂ dans le front de flamme (Eq. (3.7)). Les constantes d'Arrhenius des réactions sont extraites du mécanisme GRI 3.0.

Pour mettre en avant les gains obtenus sur le temps de calcul lorsque la méthode HTTC est appliquée à la combustion de combustibles lourds, des flammes kérosène/air ont été effectuées (chapitre 4).

Le kérosène est assimilé à deux mélanges de substitution, présentés plus tôt dans ce chapitre. Le mécanisme de Luche *et al.* [141] est utilisé pour modéliser leur combustion. Il permet de modéliser la combustion du n-décane, mais également du mélange de substitution au kérosène décrit dans le tableau 3.2. Ce dernier contient du n-propylcyclohexane (CYC9H18), qui intervient exclusivement dans un ensemble de réactions chimiques impliquant les espèces CC9H17C, EC9H17C et FC9H17C (Tab. 3.7). Lorsqu'un mélange de réactifs contenant uniquement du n-décane est brûlé, l'espèce CYC9H18 est absente et CC9H17C, EC9H17C et FC9H17C ne peuvent pas être produites. Dans ce cas, ces 4 espèces et l'ensemble de réactions associées peut alors être retiré du mécanisme réactionnel.

Par ailleurs, les réactions chimiques faisant intervenir les NO_x lors de la combustion du kérosène

CC9H17C + HO2	=>	CYC9H18 + O2
CYC9H18 + O2	=>	EC9H17C + HO2
EC9H17C + HO2	=>	CYC9H18 + O2
CYC9H18 + O2	=>	FC9H17C + HO2
FC9H17C + HO2	=>	CYC9H18 + O2
CYC9H18 + OH	=>	CC9H17C + H2O
CC9H17C + H2O	=>	CYC9H18 + OH
CYC9H18 + OH	=>	EC9H17C + H2O
CYC9H18 + OH	=>	FC9H17C + H2O
FC9H17C + H2O	=>	CYC9H18 + OH
CYC9H18 + O	=>	CC9H17C + OH
CC9H17C + OH	=>	CYC9H18 + O
CYC9H18 + O	=>	EC9H17C + OH
EC9H17C + OH	=>	CYC9H18 + O
CYC9H18 + O	=>	FC9H17C + OH
FC9H17C + OH	=>	CYC9H18 + O
CYC9H18 + H	=>	CC9H17C + H2
CC9H17C + H2	=>	CYC9H18 + H
CYC9H18 + H	=>	EC9H17C + H2
EC9H17C + H2	=>	CYC9H18 + H
CYC9H18 + H	=>	FC9H17C + H2
FC9H17C + H2	=>	CYC9H18 + H
CYC9H18 + CH3	=>	CC9H17C + CH4
CC9H17C + CH4	=>	CYC9H18 + CH3
CYC9H18 + CH3	=>	EC9H17C + CH4
CYC9H18 + CH3	=>	FC9H17C + CH4
FC9H17C + CH4	=>	CYC9H18 + CH3
CC9H17C + C2H4	=>	CYC9H18 + C2H3
FC9H17C + C2H4	=>	CYC9H18 + C2H3
CYC9H18 + C2H5	=>	CC9H17C + C2H6
CC9H17C + C2H6	=>	CYC9H18 + C2H5
CYC9H18 + C2H5	=>	EC9H17C + C2H6
CYC9H18 + C2H5	=>	FC9H17C + C2H6
FC9H17C + C2H6	=>	CYC9H18 + C2H5
CYC9H18 + AC3H5	=>	CC9H17C + C3H6
CC9H17C + C3H6	=>	CYC9H18 + AC3H5
CYC9H18 + AC3H5	=>	EC9H17C + C3H6
EC9H17C + C3H6	=>	CYC9H18 + AC3H5
CYC9H18 + AC3H5	=>	FC9H17C + C3H6
FC9H17C + C3H6	=>	CYC9H18 + AC3H5
CC9H17C + CH2O	=>	CYC9H18 + HCO
FC9H17C + CH2O	=>	CYC9H18 + HCO
CYC9H18 + CH3O	=>	CC9H17C + CH3OH
CYC9H18 + CH3O	=>	EC9H17C + CH3OH
CYC9H18 + CH3O	=>	FC9H17C + CH3OH
CYC9H18	=>	3C2H4 + C3H6
FC9H17C	=>	CC9H17C
CC9H17C	=>	FC9H17C
EC9H17C	=>	C4H6 + C2H4 + NC3H7

Tableau 3.7 – Mécanisme chimique du n-propylcyclohexane (CYC9H18) issu du schéma cinétique squelettique pour le kérosène de Luche *et al.* [141]. La nomenclature employée dans [141] est utilisée pour nommer les espèces chimiques.

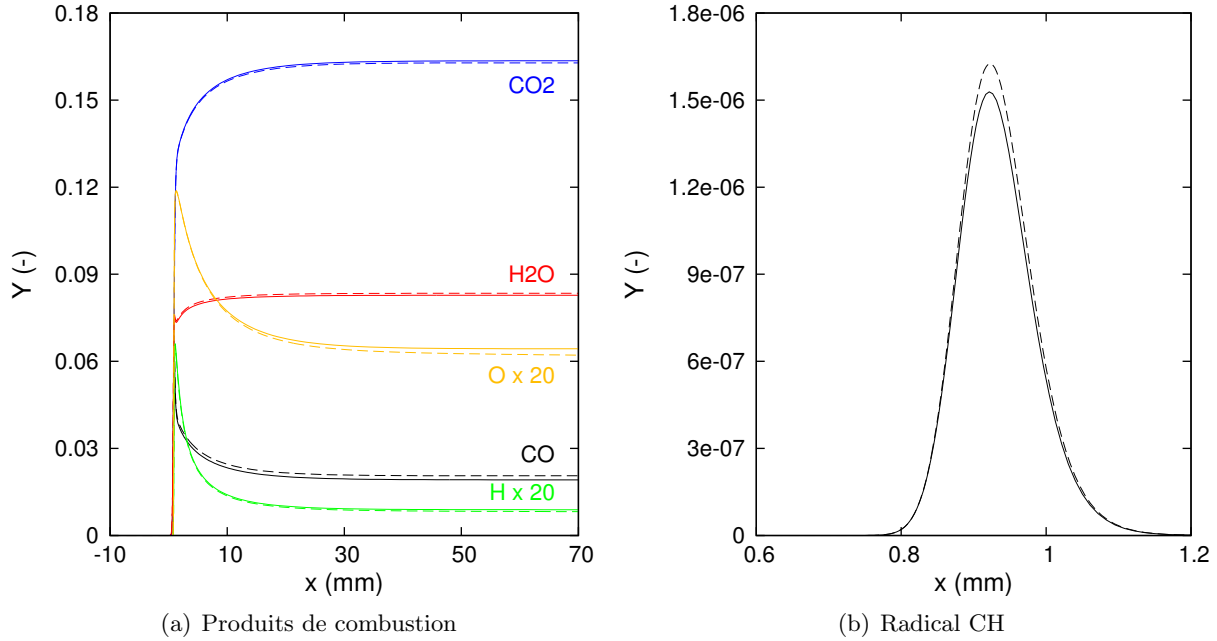


Figure 3.5 – Fractions massiques d'espèces majoritaires et radicalaires dans l'espace physique, dans une flamme 1D décane/air stœchiométrique ($T_u = 500$ K, $P = 1$ bar), avec (lignes pointillées) et sans (lignes pleines) le mécanisme cinétique pour la formation des NO_x .

ont une influence faible sur le calcul des espèces majoritaires et de la température dans les gaz brûlés (Fig. 3.5(a)), mais également sur la fraction massique des espèces radicalaires dans le front de flamme (Fig. 3.5(b)). L'ajout du mécanisme de la formation des NO_x a un impact négligeable sur la température et sur les fractions massique de CO_2 et H_2O (Tab. 3.8). La valeur à l'équilibre de la fraction massique de CO est quant à elle différente d'environ 10%. Les fractions massiques des espèces O et H , fortement impliquées dans les réactions chimiques conduisant à la formation des NO_x , en particulier dans les mécanismes de formation de NO et NO_2 présentés précédemment, sont également légèrement modifiées. Une observation similaire a été faite dans des flammes de diffusion 1D dans [131]. Ces réactions et toutes les espèces azotées (autre que N_2) peuvent donc être retirées du mécanisme, lorsque les NO_x ne font pas partie des espèces cibles dont on veut prédire la concentration. Ces simplifications conduisent donc à des variantes du mécanisme initial de Luche, résumées dans le tableau 3.9, et utilisées dans le chapitre 4. Ce tableau inclut un mécanisme supplémentaire pour le décane, contenant le schéma réduit pour les NO_x à 9 espèces présenté précédemment.

Enfin, pour évaluer les gains de performances apportés par les optimisations du solveur multi-espèces, présentées dans la suite de ce chapitre, le mécanisme très détaillé de Curran *et al.* [42] a été sélectionné. Il contient 857 espèces et 3598 réactions réversibles. Il a également été utilisé dans le chapitre 4 pour mettre en évidence les propriétés d'auto-similarité des flammes d'hydrocarbures.

3.2 Calcul des termes source des espèces

L'équation-bilan (3.1) est une représentation globale de la réaction de combustion, mais elle ne tient pas compte de la complexité des phénomènes qui se produisent à l'échelle microscopique, notamment au niveau du front de flamme. En réalité, un nombre important de réactions chimiques élémentaires, faisant intervenir des radicaux et espèces chimiques intermédiaires, sont nécessaires pour modéliser la transformation des réactifs en produits. L'ensemble de ces espèces intermédiaires et de ces réac-

Variable	Différence relative maximale (%)
Température	0.25
Y_{CO}	-9.42
Y_{CO_2}	0.67
$Y_{\text{H}_2\text{O}}$	-0.97
Y_{O}	7.32
Y_{H}	13.96
Y_{CH}	-6.48

Tableau 3.8 – Différence relative maximale induite par l’ajout du mécanisme des NO_x sur le calcul de la température et des espèces, dans une flamme 1D décane/air stœchiométrique ($T_u = 500$ K, $P = 1$ bar). La différence est calculée en prenant $100 \times \max[(\varphi(x) - \varphi^{\text{NO}_x}(x))/\varphi(x)]$, où φ (resp. φ^{NO_x}) représente n’importe quelle grandeur de la flamme calculée sans inclure le mécanisme des NO_x (resp. en incluant le mécanisme des NO_x).

Nom	N_{sp}		N_{r}	
	Total	dont NOx	Total	dont NOx
Décane sans NOx	70	-	697	-
Décane avec NOx	87	17	942	245
Décane avec NOx réduit	73	3	706	9
Kérosène sans NOx	74	-	746	-
Kérosène avec NOx	91	17	991	245

Tableau 3.9 – Différentes variantes du mécanisme de Luche *et al.* [141] utilisées au cours de cette thèse.

tions élémentaires sont regroupées dans un mécanisme cinétique, qu'on qualifie alors de "détaillé". Ce mécanisme cinétique peut s'écrire de la façon suivante, en considérant des réactions réversibles :

$$\sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \nu'_{kj} \mathcal{M}_k \rightleftharpoons \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \nu''_{kj} \mathcal{M}_k \quad \text{pour } j \in [1, N_r] \quad (3.8)$$

avec N_{sp} et N_r le nombre d'espèces et de réactions élémentaires réversibles contenues dans le mécanisme, $\mathcal{M}_k$ le symbole de l'espèce k , ν'_{kj} et ν''_{kj} les coefficients stoechiométriques de l'espèce k dans la réaction j . Certains mécanismes sont modélisés uniquement avec des réactions supposées non-réversibles :

$$\sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \nu'_{kj} \mathcal{M}_k \rightarrow \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \nu''_{kj} \mathcal{M}_k \quad \text{pour } j \in [1, N_r] \quad (3.9)$$

avec N_r le nombre de réactions élémentaires non-réversibles contenues dans le mécanisme.

3.2.1 Taux de réaction et constantes de vitesse

Le terme source $\dot{\omega}_k$ de l'espèce k est la somme des contributions $\dot{\omega}_{kj}$ de chaque réaction j du mécanisme cinétique :

$$\dot{\omega}_k = \sum_{j=1}^{N_r} \dot{\omega}_{kj} = \sum_{j=1}^{N_r} W_k \nu_{kj} \mathcal{Q}_j \quad (3.10)$$

avec ν_{kj} le coefficient stoechiométrique de l'espèce k dans la réaction j et $\mathcal{Q}_j$ le taux de réaction de la réaction j . Dans le cas d'une réaction non-réversible, le taux de réaction $\mathcal{Q}_j$ est égal au taux de réaction dans le sens direct (*forward*), noté $\mathcal{Q}_{j,\text{f}}$, exprimé en fonction des concentrations $[X_k] = \rho Y_k / W_k$ et de la constante de vitesse en sens direct $k_{j,\text{f}}$:

$$\mathcal{Q}_{j,\text{f}} = k_{j,\text{f}} \prod_{k=1}^{N_{\text{sp}}} [X_k]^{\nu'_{kj}} \quad (3.11)$$

La constante de vitesse $k_{j,\text{f}}$ est une fonction de la température, donnée par la loi d'Arrhenius :

$$k_{j,\text{f}} = A_j T^{\beta_j} \exp \left(-\frac{T_{aj}}{T} \right) \quad (3.12)$$

avec A_j le facteur pré-exponentiel, β_j la correction en température et T_{aj} la température d'activation de la réaction j .

Lorsque la réaction est réversible, la réaction en sens inverse (*backward*) est en compétition avec la réaction dans le sens direct. Le taux de réaction en sens inverse, noté $\mathcal{Q}_{j,\text{b}}$, doit alors être soustrait au taux de réaction en sens direct pour obtenir le taux de réaction global :

$$\mathcal{Q}_j = \mathcal{Q}_{j,\text{f}} - \mathcal{Q}_{j,\text{b}} \quad (3.13)$$

où $\mathcal{Q}_{j,\text{b}}$ est donné par :

$$\mathcal{Q}_{j,\text{b}} = k_{j,\text{b}} \prod_{k=1}^{N_{\text{sp}}} [X_k]^{\nu''_{kj}} \quad (3.14)$$

La constante de vitesse dans le sens inverse $k_{j,\text{b}}$ est obtenue à partir de $k_{j,\text{f}}$ et de la constante d'équilibre

thermodynamique :

$$k_{j,b} = \frac{k_{j,f}}{\left(\frac{P_{\text{atm}}}{RT}\right)^{\sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \nu_{kj}} \exp\left(\frac{\Delta S_j^0(T)}{R} - \frac{\Delta H_j^0(T)}{RT}\right)} \quad (3.15)$$

où $P_{\text{atm}} = 1$ bar. ΔS_j^0 et ΔH_j^0 sont respectivement les différences d'entropie et d'enthalpie entre les produits et les réactifs de la réaction j à la température T . Ces grandeurs sont calculées à partir des coefficients NASA. Notons que pour certains schémas cinétiques, comme le mécanisme de l'iso-octane de Curran *et al.*, les constantes de vitesse en sens inverse sont également calculées à l'aide de la loi d'Arrhenius, avec un second jeu de paramètres (A, β, T_a) , au lieu d'utiliser la constante d'équilibre thermodynamique.

3.2.2 Réactions *three-body*

Un mécanisme cinétique peut contenir des réactions élémentaires de la forme :



Dans ce type de réactions, une espèce M quelconque présente dans le milieu réactionnel intervient, soit pour récupérer l'excès d'énergie afin de stabiliser la molécule AB (sens direct), soit pour apporter l'énergie nécessaire pour briser la liaison entre A et B (sens indirect). Notons que durant la réaction, M ne se combine ni avec A , ni avec B , d'où l'appellation de réaction *three-body* (réaction "à trois corps"). Chacune des espèces présentes dans l'écoulement est susceptible de rencontrer les espèces A et B pour participer à la réaction. Cependant, chaque espèce est un partenaire collisionnel plus ou moins efficace. Une espèce plus légère que A ou B aura par exemple tendance à avoir une efficacité faible. Un facteur d'efficacité e_k est donc introduit pour calculer la concentration effective des espèces *three-body* M :

$$[M] = \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} e_k C_k \quad (3.17)$$

où C_k est la concentration molaire de l'espèce k dans le milieu réactionnel. Par défaut, $e_k = 1$, et les valeurs différentes de 1 sont indiquées dans le mécanisme réactionnel. Une valeur de e_k inférieure à 1 signifie que l'espèce k est un partenaire collisionnel peu efficace, tandis qu'une valeur supérieure à 1 signifie au contraire que la collision avec l'espèce k est particulièrement efficace. Une valeur nulle indique que l'espèce k n'a aucun effet sur la réaction concernée. En pratique, l'expression suivante, équivalente à l'Eq. (3.17), est utilisée dans SiTCom-B pour calculer $[M]$:

$$[M] = \frac{\rho}{W} + \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} (1 - e_k) C_k \quad (3.18)$$

Le terme ρ/W correspond à la concentration totale en molécules de l'écoulement, et le terme $\sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} (1 - e_k) C_k$ représente la contribution des partenaires collisionnels dont l'efficacité est différente de 1.

3.2.3 Réactions *fall-off*

Certaines réactions élémentaires requièrent la présence de partenaires collisionnels à basse pression, tandis que ces derniers ne sont plus nécessaires à haute pression. Lorsque la valeur de la pression (ou de manière équivalente, la valeur de $[M]$) tend vers 0, la constante de vitesse vaut k_0 et le taux de réaction a une dépendance en $[M]$ d'ordre 1, et lorsque la pression tend vers l'infini, la constante de

vitesse vaut k_∞ et le taux de réaction ne dépend pas de $[M]$. Lindemann [128] a proposé une expression de la constante de vitesse pour décrire le taux de réaction, lorsque la pression est comprise entre ces limites asymptotiques (dans la région dite “*fall-off*”) :

$$k_f = \frac{k_0[M]}{1 + \frac{k_0[M]}{k_\infty}} \quad (3.19)$$

k_0 et k_∞ sont calculés avec la loi d’Arrhenius habituelle. Les deux jeux de paramètres (A , β , T_a) correspondants sont donnés dans le mécanisme réactionnel. En introduisant une pression réduite P_r définie par :

$$P_r = \frac{k_0[M]}{k_\infty} \quad (3.20)$$

k_f se réécrit :

$$k_f = k_\infty \left(\frac{P_r}{1 + P_r} \right) \quad (3.21)$$

Gilbert *et al.* [76] ont ajouté à l’Eq. (3.21) une fonction de correction F (appelée fonction de Troe, du nom d’un des auteurs) pour mieux prendre en compte la dépendance en pression :

$$k_f = k_\infty \left(\frac{P_r}{1 + P_r} \right) F(T, P_r) \quad (3.22)$$

La fonction F est définie par :

$$\log_{10} F(T, P_r) = \frac{\log_{10} F_{cent}}{1 + f_1^2} \quad (3.23)$$

avec

$$F_{cent}(T) = (1 - \alpha)e^{-\frac{T}{T_3}} + \alpha e^{-\frac{T}{T_1}} + e^{-\frac{T_2}{T}} \quad (3.24)$$

et

$$f_1 = \frac{\log_{10} P_r + C}{N - 0.14(\log_{10} P_r + C)} \quad (3.25)$$

C et N sont définis par :

$$C = -0.4 - 0.67 \log_{10} F_{cent} \quad (3.26a)$$

$$N = 0.75 - 1.27 \log_{10} F_{cent} \quad (3.26b)$$

Les paramètres α , T_1 , T_2 et T_3 sont donnés dans le mécanisme cinétique. Notons que d’autres formes de la fonction de correction F existent, bien qu’elles ne soient pas détaillées ici, comme la fonction dite “SRI” [209, 105].

Le calcul des constantes de vitesse des réactions *fall-off*, qui vient d’être présenté, a été implémenté dans SiTCom-B au cours de cette thèse, afin de traiter convenablement ce type de réaction, rencontrées couramment dans les mécanismes cinétiques utilisés dans cette étude.

3.3 Structures canoniques de flammes

Plusieurs régimes de combustion sont habituellement définis pour différencier et classer les écoulements réactifs : la flamme de prémélange, la flamme de diffusion (ou flamme non-prémélangée) et l’auto-allumage. Des configurations canoniques peuvent être associées à chacun de ces régimes : front de flamme mono-dimensionnel se propageant librement vers un mélange homogène de gaz frais pour le régime de prémélange, flamme à contre-courant mono-dimensionnelle pour le régime de diffusion, ou encore réacteur parfaitement homogène pour le régime d’auto-allumage.

Dans les systèmes industriels réels, il est courant que les écoulements rencontrés mettent en jeu plusieurs de ces régimes à la fois, et dissocier ces derniers peut alors être une tâche complexe. Les régimes canoniques sont trop restrictifs pour s'appliquer à ces systèmes, et des configurations intermédiaires, comme les flammes partiellement pré-mélangées ou les flammes triples, apparaissent alors. Par ailleurs, la stabilité des flammes rencontrées dans de tels systèmes est souvent fortement dépendante de la façon dont les différents régimes de combustion interagissent.

La description des régimes canoniques est d'autant plus essentielle que certains modèles de combustion, comme montré dans le chapitre d'introduction, sont basés sur l'utilisation d'une structure de flamme donnée. C'est en particulier le cas pour les méthodes de chimie tabulée, comme le modèle FPI, et le modèle HTTC développé au cours de cette thèse, qui reposent sur une structure de flamme 1D prémélangée.

Les trois paragraphes suivants décrivent respectivement les régimes d'auto-allumage, de pré-mélange, et de diffusion. Le quatrième paragraphe donne un bref aperçu des mécanismes conduisant à la stabilisation des flammes triples, qui font l'objet de l'étude présentée dans le chapitre 5. Enfin, cette section s'achève avec un paragraphe sur l'indice de flamme, une grandeur définie pour déterminer localement le régime de combustion prédominant.

3.3.1 Réacteurs parfaitement prémélangés et auto-allumage

Lorsque la température d'un mélange de combustible et d'oxydant est assez élevée, des processus d'auto-allumage peuvent avoir lieu dans l'écoulement. C'est notamment le cas dans les chambres de combustion des moteurs de type *scramjets*², dans lesquelles les vitesses supersoniques ne permettent pas la propagation d'une flamme, mais où le préchauffage de l'air, dû à sa forte compression en amont de la chambre, permet l'auto-inflammation du mélange.

Le phénomène d'auto-allumage peut être modélisé par un réacteur homogène 0D fermé. Dans ce cas, l'évolution de la composition et de la température d'un mélange de réactifs à volume constant est déterminée en fonction du temps uniquement. Seules les variables thermodynamiques sont calculées, et les équations de conservation des espèces sont alors nettement plus simples que dans le cas d'un écoulement 3D :

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} = \dot{\omega}_k \quad (3.27)$$

Pour fermer le système d'équations, il convient de fixer un couple de deux grandeurs thermodynamiques, telles que la pression et l'enthalpie, le volume et l'enthalpie ou encore l'entropie et la pression. L'équation à résoudre pour l'énergie dépend du couple choisi. La figure 3.6 montre l'évolution de la température et des espèces CO et CO₂ d'un mélange méthane/air stœchiométrique, dans un réacteur homogène à pression et enthalpie constantes.

3.3.2 Flammes de pré-mélange

Lorsque sa richesse se trouve à l'intérieur des limites de flammabilité, un mélange de combustible et d'oxydant est un milieu propice à la propagation d'un front de flamme, alors appelée "flamme de pré-mélange". La structure d'une flamme de prémélange est montrée sur la figure 3.7. En amont de la flamme, la température augmente du fait de la diffusion de l'énergie provenant de la flamme, dans une zone appelée "zone de préchauffage", dont l'épaisseur est notée δ_T . Cette zone est suivie par le front de flamme à proprement parler (la "zone de réaction"), où a lieu le dégagement de chaleur, responsable

2. Le *scramjet*, ou superstatoréacteur, est un système de motorisation dans lequel le flux d'air circule à des vitesses supersoniques. Il est destiné à des avions pouvant atteindre des vitesses très élevées (avec un nombre de Mach de l'ordre de 6).

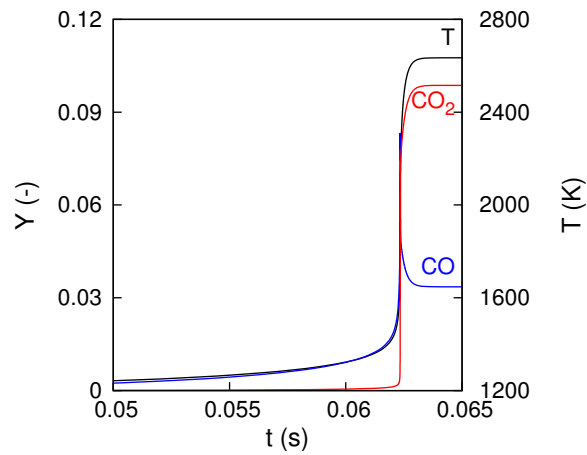


Figure 3.6 – Evolution temporelle d'un mélange méthane/air stœchiométrique dans un réacteur homogène 0D à pression ($P = 1$ bar) et enthalpie constantes. La température initiale est 1200 K. Le calcul a été effectué avec le solveur 0D du code REGATH, avec le mécanisme de Lindstedt.

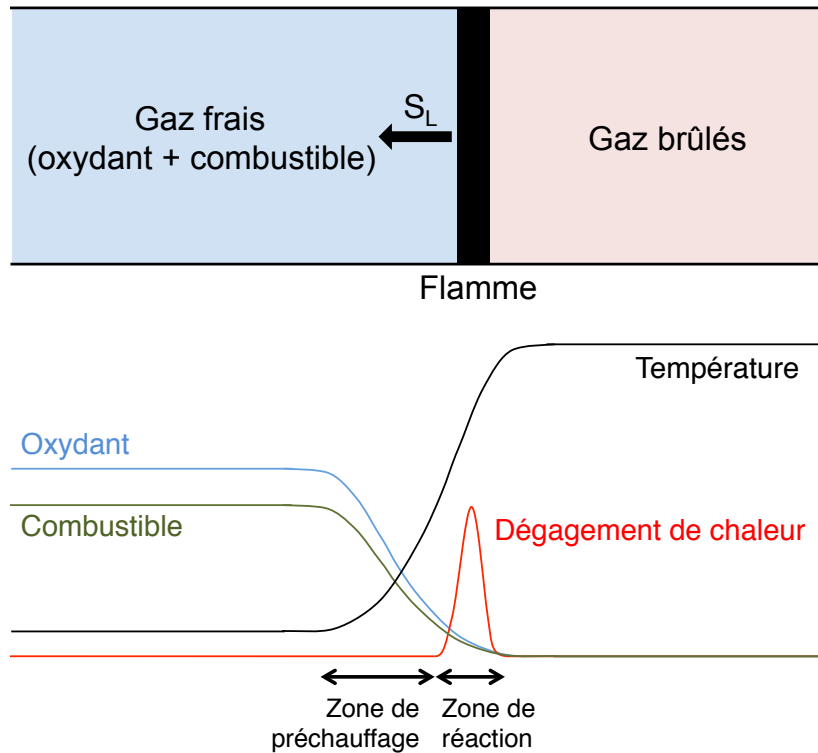


Figure 3.7 – Structure d'une flamme de prémélange.

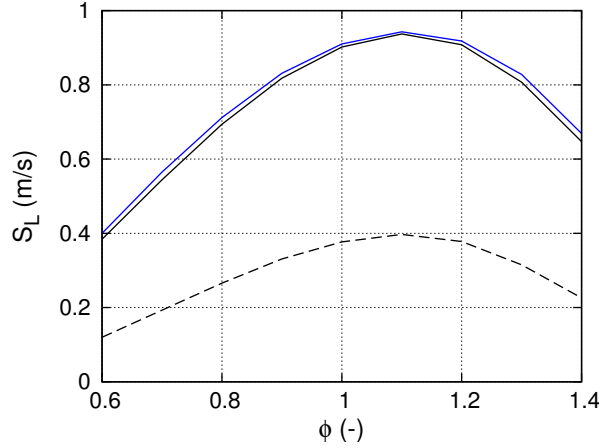


Figure 3.8 – Vitesse de flamme S_L en fonction de la richesse à une pression de 1 bar, pour des flammes méthane/air (--- $T_u = 300$ K, — $T_u = 500$ K) et décane/air (— $T_u = 500$ K). Les vitesses ont été calculées dans le solveur 1D du code REGATH avec le mécanisme de Lindstedt pour le méthane et Luche pour le décane.

Combustible/oxydant	$\phi_{u,L}$	$\phi_{u,R}$
méthane/air ($P = 1$ bar et $T_u = 293$ K)	0.55-0.65	1.30-1.68
n-décane ($P = 1$ bar et $T_u = 373$ K)	0.57	4.17

Tableau 3.10 – Limites d’inflammabilité du méthane et du décane dans l’air [39].

de l’augmentation de la température, et indirectement, d’une augmentation de la vitesse et d’une diminution de la masse volumique de l’écoulement dans les gaz brûlés.

En l’absence d’étirement, de courbure et de turbulence, la flamme se propage vers les gaz frais à une vitesse notée S_L , qui dépend essentiellement de la température et de la richesse des gaz frais (Fig. 3.8), mais aussi de la pression. La figure 3.8 montre que S_L est maximal pour des valeurs de la richesse proches de 1, et croît avec la température. Elle fait en outre apparaître des vitesses de flamme similaire pour le méthane et le décane. Dans une flamme 1D laminaire, S_L est facilement calculé en intégrant le terme source d’un réactif ou d’un produit à travers la flamme [175] :

$$S_L = -\frac{1}{\rho_u(Y_{k,u} - Y_{k,b})} \int_{-\infty}^{+\infty} \dot{\omega}_k dx \quad (3.28)$$

où les indices u et b représentent respectivement les gaz frais et brûlés.

La propagation d’une flamme n’est possible que si la richesse des gaz frais n’est pas trop faible ou trop élevée, ou autrement dit, que si elle est comprise entre une limite basse, appelée limite d’inflammabilité pauvre et notée ϕ_L (L pour “lean”), et une limite haute, appelée limite d’inflammabilité riche et notée ϕ_R (R pour “rich”). Des études expérimentales [39] ont permis de déterminer leur valeur dans des conditions variées de température et de pression. Elles sont données dans le tableau 3.10 pour des mélanges méthane/air et décane/air. Notons que pour les mélanges méthane/air, la limite riche varie en fonction des conditions des tests effectués dans [39]. Le décane est liquide à 1 bar et 293 K, c’est pourquoi il a été préchauffé jusqu’à 373 K, expliquant la limite riche largement supérieure à celle du méthane.

En présence de phénomènes d'étirement et de courbure, qui induisent une déformation du front de flamme, la vitesse de flamme, alors notée S_d , est différente de la valeur S_L observée pour une flamme plane non-étirée. Pour une flamme plane ou faiblement courbée, les vitesses S_d et S_L sont reliées par l'étirement κ et la longueur de Markstein $\mathcal{L}$ [147, 35] :

$$S_d = S_L - \mathcal{L}\kappa \quad (3.29)$$

où l'étirement κ , qui correspond au taux de variation d'un élément de surface de flamme A , est défini par :

$$\kappa = \frac{1}{A} \frac{dA}{dt} \quad (3.30)$$

Cette relation ne fait pas intervenir la courbure de la flamme, et ne permet pas de prédire la vitesse de propagation d'une flamme fortement courbée. Chung et Law [34] ont donc proposé une relation faisant intervenir la courbure h du front de flamme, dans le cas d'une cinétique chimique à une étape :

$$\frac{S_d}{S_L} = 1 + \delta_T h + \kappa \frac{\delta_T}{2T_{ad}/T_a} \left(\frac{1}{Le} - 1 \right) \quad (3.31)$$

où T_{ad} est la température de flamme adiabatique, Le est le nombre de Lewis du combustible, et T_a est la température d'activation de la loi d'Arrhenius. La courbure h est définie par :

$$h = \frac{1}{R} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \quad (3.32)$$

Dans cette expression, R_1 et R_2 correspondent respectivement au plus grand rayon de courbure et au rayon de courbure obtenu dans la direction perpendiculaire. R est le rayon de courbure total.

De telles relations obtenues analytiquement dans des configurations canoniques ne permettent toutefois pas de prédire l'influence de la courbure et de l'étirement dans des configurations réelles. Des études expérimentales [52, 9, 32] ont montré que les effets de courbure dominent dans les flammes fortement courbées. Ces études montrent que dans le cas d'une courbure concave par rapport aux gaz frais (type bec Bunsen), la vitesse de propagation augmente, tandis qu'elle tend à diminuer pour des surfaces convexes (base de flamme jet). D'autres auteurs [216] ont étudié l'influence du nombre de Lewis dans les flammes étirées pour plusieurs hydrocarbures, et concluent que l'influence de l'étirement est plus ou moins importante suivant la valeur du nombre de Lewis du combustible considéré.

3.3.3 Flammes de diffusion

Lorsque le combustible et l'oxydant sont injectés séparément, on rencontre des flammes dites de "diffusion". La flamme est alors principalement contrôlée par le mélange entre les réactifs. La zone réactive, où se produit le dégagement de chaleur, se situe alors à proximité de l'iso-ligne $Z = Z_{st}$, où Z_{st} est la valeur stœchiométrique de Z . La structure d'une flamme de diffusion est illustrée sur la figure 3.9.

3.3.4 Flammes partiellement prémélangées

Dans les systèmes industriels, les structures canoniques de flammes de prémélange et de diffusion font souvent place à des structures de flamme plus complexes, mettant en jeu ces deux régimes à la fois. On parle alors de flamme "partiellement prémélangée".

Pour illustrer le régime partiellement prémélangé, on s'intéresse aux flammes issues de la combustion d'un mélange d'air et de combustible provenant d'un brûleur simple (cylindrique ou fente), avec

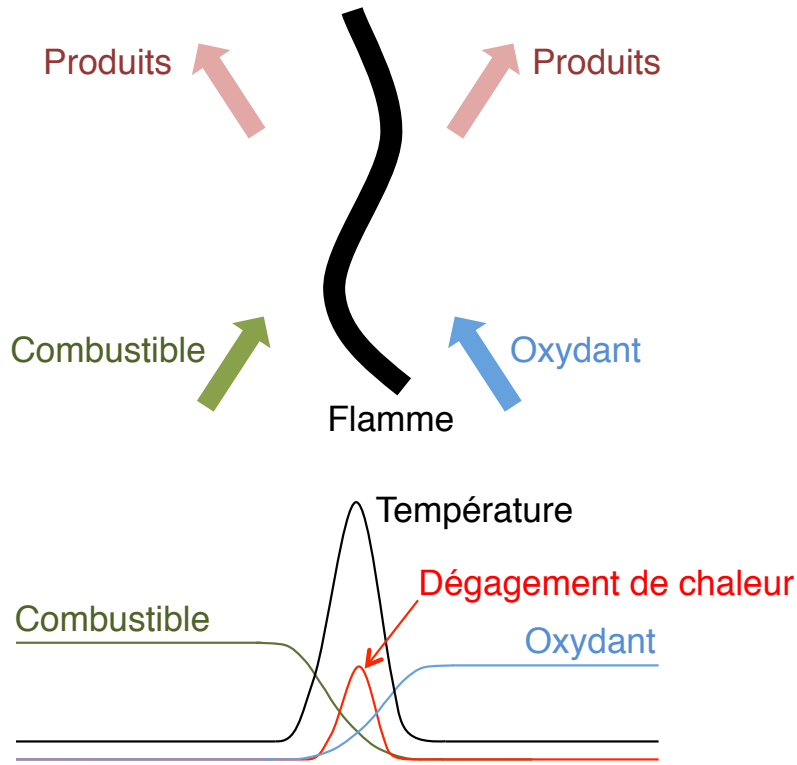


Figure 3.9 – Structure d'une flamme de diffusion.

l'air ambiant. A titre d'exemple, une telle configuration a été étudiée dans la thèse de K. Criner [40], qui étudie la stabilisation d'une flamme de méthane au-dessus d'un brûleur cylindrique, en fonction de la vitesse de l'écoulement U et de la fraction massique de méthane Y_f à la sortie du brûleur (Fig. 3.10). Pour $0.1 < Y_f < 0.35$, la flamme est accrochée au brûleur lorsque la vitesse d'injection ne dépasse pas une valeur critique $U_L(Y_f)$. La structure de flamme est alors celle d'une flamme de diffusion, comme présentée précédemment. Lorsque que la vitesse dépasse le seuil critique, la flamme est soufflée. Pour $Y_f > 0.35$, la flamme est toujours accrochée au brûleur lorsque $U < U_L$. Lorsque la vitesse dépasse U_L , la flamme n'est plus soufflée mais se décroche pour se stabiliser au-dessus du brûleur, à une hauteur qui augmente avec U . La flamme est soufflée pour une vitesse U supérieure à une vitesse limite notée U_B .

Dans une configuration de flamme décrochée, les réactifs ont le temps de se mélanger partiellement avant de réagir au niveau de la flamme. Une telle flamme est alors constituée d'un front de flamme prémélangé qui lui permet de se propager, divisé en une zone riche et une zone pauvre, suivi d'une flamme de diffusion (Fig. 3.11). La flamme fait donc apparaître trois zones distinctes (prémélange pauvre, prémélange riche et diffusion), ce qui lui vaut habituellement l'appellation de "flamme triple". Ces trois zones n'étant pas toujours évidentes à distinguer, certains auteurs préfèrent le terme plus générique d'"extrémité de flamme" (*edge flame*). Une étude plus détaillée de la structure de ce type de flammes est proposée dans le Chapitre 5.

3.3.5 Indice de flamme

Afin de déterminer localement le régime de flamme prédominant, Yamashita *et al.* [240] ont proposé de définir un indice de flamme, noté G_{FO} (aussi appelé "indice de Takeno", du nom d'un des auteurs de l'article) :

$$G_{FO} = \nabla Y_F \cdot \nabla Y_O \quad (3.33)$$

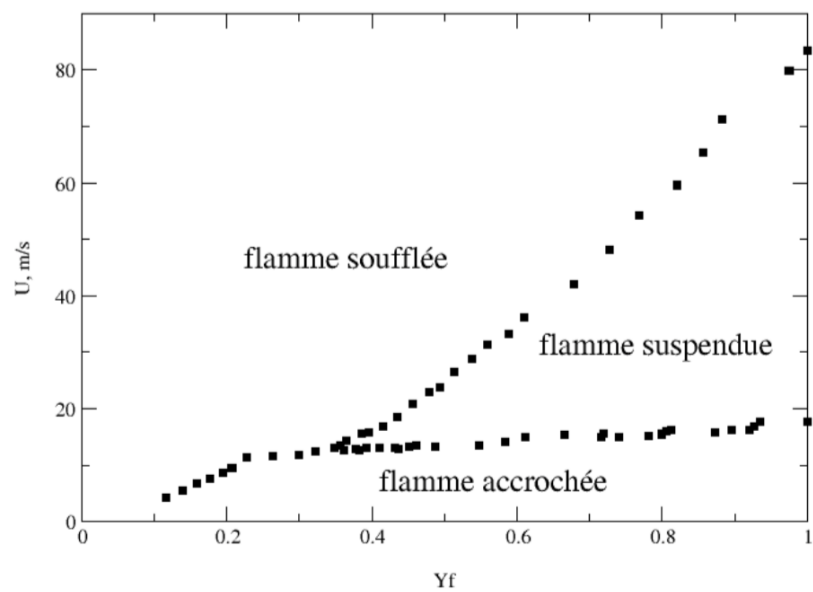


Figure 3.10 – Stabilité d’une flamme méthane/air en fonction de la fraction massique de méthane dans l’injecteur et de la vitesse d’injection [40]. L’injecteur a un diamètre intérieur de 5 mm et un diamètre extérieur de 7 mm.

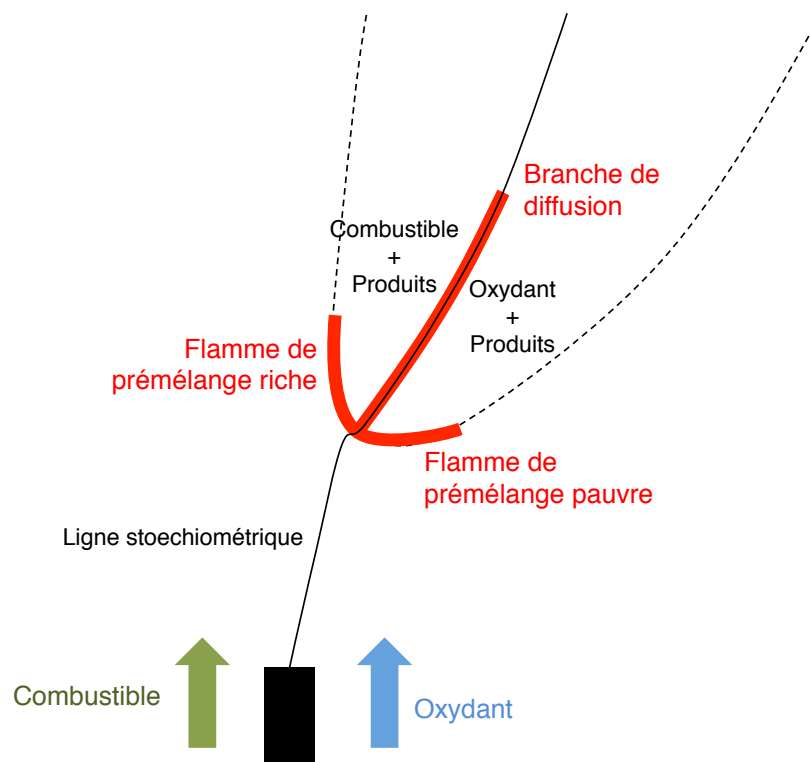


Figure 3.11 – Structure d’une flamme triple.

où Y_F est la fraction massique du combustible et Y_O la fraction massique de l'oxydant. Domingo *et al.* [48] proposent de normaliser cet indice :

$$\xi_p = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{G_{FO}}{|G_{FO}|} \right) \quad (3.34)$$

Dans une flamme de prémélange, les gradients des fractions massiques Y_O et Y_F sont orientés dans la même direction lors de la traversée du front de flamme. On a alors $G_{FO} > 0$ et $\xi_p = 1$. Dans le cas d'une flamme de diffusion, ∇Y_F et ∇Y_O ont des sens opposés. On a donc $G_{FO} < 0$ et $\xi_p = 0$.

Dans leur étude sur les flammes triples, Briones *et al.* [21] ajoutent la fraction de mélange dans le calcul de l'indice de flamme, pour différencier les zones de prémélange pauvres et riches :

$$\xi_M = \frac{1}{2} \left(\frac{Z - Z_s}{|Z - Z_s|} \right) \left(1 + \frac{G_{FO}}{|G_{FO}|} \right) \quad (3.35)$$

où Z_s est la valeur stoechiométrique de Z . On a maintenant :

- $\xi_M = -1$ pour une flamme de prémélange pauvre,
- $\xi_M = 1$ pour une flamme de prémélange riche,
- $\xi_M = 0$ pour une flamme de diffusion.

Knudsen et Pitsch [113] soulignent le fait que ces expressions sont uniquement basées sur les gradients des réactifs, et ne sont donc pas forcément adaptés à des mécanismes détaillés, notamment pour les combustibles lourds, qui se décomposent en espèces plus légères avant de contribuer au dégagement de chaleur, comme montré plus tôt dans ce chapitre. Les auteurs proposent ainsi une expression modifiée de l'indice de flamme, utilisée dans le modèle de chimie tabulée *Flamelet Progress Variable* (présenté dans le chapitre 1) pour choisir localement la table appropriée (prémélange ou diffusion).

Enfin, on notera que de façon analogue à l'indice de flamme, certains auteurs [196] ont mis en place un critère permettant de différencier le régime d'auto-allumage du régime de flamme de prémélange, en étudiant la contribution relative de certaines réactions chimiques à la formation de l'espèce chimique HO_2 .

3.4 Modélisation dans SiTCom-B

3.4.1 Caractéristiques principales du code

3.4.1.1 Généralités

Le code SiTCom-B résout les équations de Navier-Stokes compressibles sur des grilles cartésiennes, en utilisant le formalisme des volumes finis en DNS et en LES. Il est entièrement écrit en Fortran 90. L'avancement en temps des équations de transport est entièrement explicite. Il est assuré par une méthode de type Runge-Kutta à l'ordre 4, dite "low-storage", proposée par Shu et Osher [201] et présentée dans le paragraphe 3.4.1.3. Le schéma numérique de Ducros *et al.* [51] est utilisé pour effectuer le calcul des flux, avec une précision à l'ordre 4. La méthode NSCBC (*Navier Stokes Characteristic Boundary Conditions*), initialement développée par Poinso et Lele [174] et étendue à un formalisme 3D par Lodato *et al.* [132], permet un traitement des conditions limites limitant la réflexion des ondes de pression.

L'utilisateur du code peut inclure une géométrie solide à l'intérieur du domaine fluide avec la méthode *Immersed Boundary Condition*. Le code peut être parallélisé sur plusieurs milliers de processeurs, via l'usage des bibliothèques MPI (*Message Passing Interface*). En plus de la loi d'état des gaz parfaits, des lois d'état de type cubiques peuvent être utilisées pour prendre en compte des effets de

gaz réels.

Trois solveurs sont disponibles dans le code, permettant chacun un traitement particulier de la chimie : le solveur multi-espèces, le solveur tabulé FPI et le solveur HTTC développé durant cette thèse. Les deux premiers sont détaillés dans les sections suivantes, tandis que le solveur HTTC sera présenté dans le chapitre suivant.

Les deux paragraphes suivants donnent un bref aperçu de la méthode des volumes finis et du schéma numérique d'intégration temporelle utilisés dans SiTCom-B.

3.4.1.2 Méthode des volumes finis

Afin de pouvoir résoudre numériquement les équations de conservation présentées précédemment, celles-ci doivent être discrétisées en temps et en espace. Plusieurs familles de méthodes sont alors envisageables : différences finies, reconstruction des flux, volumes finis, etc. Le code SiTCom-B utilise la méthode des volumes finis, détaillée ci-après. Cette section présente le principe général de la méthode des volumes finis. Une équation de transport générique d'une variable quelconque Φ peut s'écrire :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} + \frac{\partial u_i \Phi}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(D_\Phi \frac{\partial \Phi}{\partial x_i} \right) + \dot{\omega}_\Phi \quad (3.36)$$

où D_Φ est le coefficient de diffusion de Φ et $\dot{\omega}_\Phi$ le terme source de Φ . La méthode des volumes finis consiste à intégrer cette équation sur un volume de contrôle V et un pas de temps Δt , et à calculer les flux de Φ sur les faces du volume V . On obtient alors :

$$\frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \frac{1}{V} \int_V \left(\frac{\partial \Phi}{\partial t} + \frac{\partial F_i}{\partial x_i} - \dot{\omega}_\Phi \right) dV dt = 0 \quad (3.37)$$

où F_i est le flux de Φ , défini par :

$$F_i = \Phi u_i - D_\Phi \frac{\partial \Phi}{\partial x_i} \quad (3.38)$$

En intégrant le terme $\partial \Phi / \partial t$, l'équation (3.37) devient :

$$\frac{1}{V} \int_V \left[\frac{1}{\Delta t} (\Phi(t + \Delta t) - \Phi(t)) \right] dV + \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \frac{1}{V} \int_V \left(\frac{\partial F_i}{\partial x_i} - \dot{\omega}_\Phi \right) dV dt = 0 \quad (3.39)$$

On introduit les notations Φ^n et Φ^{n+1} , qui correspondent aux valeurs de Φ intégré dans le volume de contrôle V , aux temps n et $n + 1$, respectivement. On introduit également le résidu R^n , qui est le terme responsable de la variation de Φ dans le volume V entre les temps n et $n + 1$:

$$R^n = \frac{1}{V} \int_V \left(\frac{\partial F_i}{\partial x_i} - \dot{\omega}_\Phi \right) dV \quad (3.40)$$

L'équation (3.39) devient :

$$\frac{\Phi^{n+1} - \Phi^n}{\Delta t} + \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} R^n dt = 0 \quad (3.41)$$

Notons qu'à ce stade, l'équation (3.41) est exacte. Un schéma numérique adapté permet de calculer les flux F_i , avec une certaine précision. L'intégrale temporelle doit également être traitée avec un schéma numérique approprié.

3.4.1.3 Avancement temporel explicite

Dans SiTCom-B, le schéma explicite de Runge-Kutta modifié par Shu et Osher [201] est utilisé pour effectuer l'avancement temporel. A l'ordre 4, la méthode se décompose comme suit :

$$\begin{cases} \Phi^1 = \Phi^n - \frac{\Delta t}{4} \times R^n \\ \Phi^2 = \Phi^n - \frac{\Delta t}{3} \times R^1 \\ \Phi^3 = \Phi^n - \frac{\Delta t}{2} \times R^2 \\ \Phi^{n+1} = \Phi^n - \Delta t \times R^3 \end{cases} \quad (3.42)$$

Cette méthode est dite “*low-storage*”, car seules deux valeurs de Φ^j sont stockées simultanément, permettant de réduire la quantité de mémoire nécessaire à l'exécution du calcul.

Lorsque Φ_i^{n+1} est calculé directement à partir de la valeur au temps précédent Φ_i^n , on parle d'avancement temporel explicite. La stabilité du schéma numérique est alors conditionnelle, ce qui signifie que le pas de temps Δt entre deux temps n et $n + 1$ doit respecter des critères de stabilité. Chaque terme de l'Eq. (3.36) impose une condition particulière, détaillée dans le paragraphe 3.4.2.3.

3.4.2 Solveur de chimie transportée

Le solveur multi-espèces de SiTCom-B est présenté dans cette section.

Avant d'effectuer une simulation, les données du mécanisme cinétique sont lues et interprétées par le code. Cette étape, permettant de calculer les propriétés de transport et les grandeurs thermodynamiques de chaque espèce à partir de leur propriétés physiques à l'échelle atomique, est présentée dans le premier paragraphe. La résolution des équations de transport et le calcul des variables thermodynamiques sont présentés dans le paragraphe suivant. Enfin le calcul du pas de temps nécessaire pour assurer la stabilité de l'avancement en temps fait l'objet du dernier paragraphe.

Durant cette thèse, le solveur multi-espèces a été optimisé, permettant un gain élevé de performances. Ces optimisations seront présentées dans la section 3.4.4. Elles concernent principalement le calcul des coefficients de transport et des taux de réaction, et les accès mémoire.

3.4.2.1 Lecture et interprétation du mécanisme cinétique

Un mécanisme cinétique est composé de plusieurs “blocs” de données :

- pour chaque réaction chimique élémentaire du mécanisme : les coefficients stœchiométriques des espèces impliquées dans la réaction, les coefficients A , β et T_a nécessaires au calcul du taux de réaction, et les coefficients relatifs aux réactions *three-body* et *fall-off*, le cas échéant.
- pour chaque espèce : les coefficients des polynômes utilisés pour calculer la capacité calorifique, l'enthalpie totale et l'entropie en fonction de la température.
- pour chaque espèce : la configuration de la molécule (mono-atomique, linéaire ou non-linéaire), le potentiel et le diamètre de collision de Lennard-Jones, le moment dipolaire, la polarisabilité, et le nombre de collisions pour atteindre l'équilibre rotationnel.

Les capacités calorifiques, enthalpies totales et entropie de chaque espèce sont exprimées en fonction de la température par des fonctions polynômiales :

$$c_{p,k} = \frac{R}{W_k} \sum_{i=1}^5 a_{k,i} T^{i-1} \quad (3.43a)$$

$$h_k = \frac{R}{W_k} \left(\sum_{i=1}^5 a_{k,i} \frac{T^i}{i} + a_{k,6} \right) \quad (3.43b)$$

$$s_k = \frac{R}{W_k} \left(a_{k,1} \log(T) + \sum_{i=2}^5 a_{k,i} \frac{T^{i-1}}{i-1} + a_{k,7} \right) \quad (3.43c)$$

Les coefficients a_k , couramment appelés “coefficients NASA” ou encore “coefficients JANAF”, sont donnés dans le mécanisme cinétique sur deux intervalles de température, le plus souvent pour $T \in [300, 1000]$ K et $T \in [1000, 5000]$ K. Dans SiTCom-B, la température de référence est prise à 0 K. Les enthalpies de formation sont donc déduites de l’Eq. (3.43b) en prenant une température nulle ($\Delta h_{f,k}^o = h_k(0)$).

Au cours de la simulation, l’Eq. (3.43b) est utilisée dans chaque cellule pour déterminer la valeur de la température en connaissant la valeur de h , déduite de l’énergie transportée. L’inversion directe de cette formule requiert la détermination de racines d’un polynôme du cinquième ordre, pouvant nécessiter un coût CPU supplémentaire. Dans SiTCom-B, une méthode alternative est donc mise en œuvre. Les valeurs de $c_{p,k}$, h_k et s_k sont calculées en utilisant les Eq. (3.43a), (3.43b) et (3.43c), et stockées par morceaux pour plusieurs valeurs discrètes de températures T_i :

$$\left. \begin{aligned} c_{p,k}(T) &= (c_{p,k})_i \\ h_k(T) &= (h_k)_i \\ s_k(T) &= (s_k)_i \end{aligned} \right\} \text{ pour } T \in [T_i, T_{i+1}] \quad (3.44)$$

Pour chaque T_i , on stocke également la valeur des $(h_{k,0})_i$, définis par :

$$h_{k,0}(T) = h_k(T) - c_{p,k}(T) \times T \quad (3.45)$$

En supposant qu’entre les itérations $n-1$ et n la variation $|T^n - T^{n-1}|$ est faible et que $T^{n-1} \in [T_i, T_{i+1}]$ et $T^n \in [T_i, T_{i+1}]$, on a $h_0(T^{n-1}) = h_0(T^n) = (h_0)_i$ et $c_p(T^{n-1}) = c_p(T^n) = (c_p)_i$. Finalement, la température est mise à jour à l’itération n :

$$T^n = \frac{h_s^n - h_0(T^{n-1}) - h_0(0)}{c_p(T^{n-1})} \quad (3.46)$$

Les viscosités, conductivités thermique et coefficients de diffusion binaires sont calculés à partir des propriétés moléculaires des espèces pour plusieurs valeurs discrètes de température, en utilisant des lois issues de la théorie cinétique des gaz. L’évolution de ces grandeurs en fonction de la température est ensuite modélisée par des polynômes en $\log T$:

$$\log \mu_k = \sum_{i=1}^4 b_{k,i} (\log T)^{i-1} \quad (3.47a)$$

$$\log \lambda_k = \sum_{i=1}^4 c_{k,i} (\log T)^{i-1} \quad (3.47b)$$

$$\log D_{jk} = \sum_{i=1}^4 d_{jk,i} (\log T)^{i-1} \quad (3.47c)$$

Cette tâche est effectuée par l’interpréteur chimique de Chemkin [105]. Ces relations sont utilisées au cours de la simulation pour calculer les coefficients de transport des espèces.

3.4.2.2 Equations de transport et calcul des propriétés thermodynamiques

Dans le solveur multi-espèces de SiTCom-B, une itération de l'avancement temporel commence par la résolution des équations de conservation des variables suivantes :

- la quantité de mouvement (Eq. (2.13)).
- l'énergie totale non-chimique (Eq. (2.26), avec $\dot{Q} = 0$ et $f_k = 0, \forall k \in [1, N_{\text{sp}}]$).
- les N_{sp} espèces k contenues dans le mécanisme cinétique. L'équation (2.43), dans laquelle les vitesses de diffusion sont calculées avec l'hypothèse de Hirschfelder et Curtiss, est utilisée.

En pratique, les variables conservatives ρU , ρE et $\rho_k = \rho Y_k, \forall k \in [1, N_{\text{sp}}]$ sont utilisées dans ces équations. Les termes sources des espèces sont calculés avec la procédure décrite dans la section 3.2. Le terme source d'énergie est simplement calculé à partir des termes sources des espèces et des enthalpies de formation (Eq. (2.27)).

Les propriétés thermodynamiques et les coefficients de transport sont ensuite mis à jour pour l'itération suivante :

1. La masse volumique ρ est déduite de la somme des ρ_k transportés :

$$\rho = \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \rho_k \quad (3.48)$$

2. Les variables U , E et Y sont issues d'une simple division des variables conservatives par ρ .
3. L'énergie cinétique e_c est déduite du champ de vitesse U , et l'énergie sensible e_s est calculée : $e_s = E - e_c$.
4. La température T est calculée à partir de l'énergie sensible, avec la procédure décrite par l'Eq. (3.46).
5. La pression est mise à jour avec la loi des gaz parfaits (Eq. (2.48)).
6. Les variables c_p , c_v , $h_{s,k}$ et c (vitesse du son) sont ensuite calculées.
7. Enfin, les coefficients de transport sont calculés avec les lois de mélange présentées dans la section 2.3.2 (approche dite “*mixture-averaged*”), à partir des propriétés de transport des espèces individuelles, déterminées avec l'Eq. (3.47).

3.4.2.3 Calcul du pas de temps

Pas de temps convectif

Le critère de Courant-Friedrichs-Lewy (CFL), lié au terme convectif $\partial u_i \Phi / \partial x_i$, impose qu'une perturbation se propageant à la vitesse $|u_i| + c$ (avec c la vitesse du son) parcourt une distance inférieure à la taille de la maille pendant le temps Δt . Le pas de temps convectif, noté Δt^C , est calculé dans chaque direction i et dans chaque maille, dont la position est repérée par le vecteur $\mathbf{x}$. Δt^C est limité par sa valeur minimale, comme suit :

$$\Delta t^C = CFL \times \min_{i, \mathbf{x}} \left(\frac{\Delta_i(\mathbf{x})}{|u_i(\mathbf{x})| + c(\mathbf{x})} \right) \quad (3.49)$$

où Δ_i est la taille de la maille dans la direction i . c est calculé avec la relation suivante :

$$c = \sqrt{\frac{c_p}{c_v} r T} \quad (3.50)$$

Nombre de dimensions	<i>CFL</i> limite	<i>Fo</i> limite
1D	2.08	1.62
2D	1.48	0.80
3D	1.20	0.56

Tableau 3.11 – Valeurs limites des paramètres *CFL* et *Fo* permettant d’assurer la stabilité de l’avancement temporel avec le schéma de Runge-Kutta à l’ordre 4 (Eq. (3.42)), en fonction du nombre de dimensions considérées.

Une étude de stabilité montre que la valeur maximale du paramètre *CFL* permettant d’assurer la stabilité de l’avancement temporel dépend du nombre de dimensions considérées et du schéma de discrétisation spatiale utilisé. Les valeurs utilisées dans cette thèse sont inférieures aux valeurs maximales théoriques. Elles sont rassemblées dans le tableau 3.11.

Pas de temps diffusif

Le critère de Fourier, lié au terme diffusif $\partial(D_\Phi \partial \Phi / \partial x_i) / \partial x_i$, impose que le pas de temps Δt doit être inférieur au pas de temps diffusif Δt^D , donné par :

$$\Delta t_\phi^D = Fo \times \min_{i, \mathbf{x}} \left(\frac{\Delta_i(\mathbf{x})^2}{D_\Phi(\mathbf{x})} \right) \quad (3.51)$$

Le coefficient de diffusion D_Φ pouvant varier pour chaque variable transportée Φ_k , le pas de temps convectif global Δt^D est donné par :

$$\Delta t^D = \min_{k \in [1, N_{\text{var}}]} (\Delta t_{\Phi_k}^D) \quad (3.52)$$

où N_{var} représente le nombre total de variables transportées dans l’écoulement. En général, les variables transportées sont la vitesse, l’énergie, et dans le cas de la simulation d’un écoulement multi-espèces, les espèces. Les coefficients de diffusion correspondant sont respectivement la viscosité du mélange, la diffusivité thermique et les diffusivités des espèces. En pratique, lorsque les effets de diffusion différentielle sont pris en compte, le pas de temps diffusif basé sur les espèces est le plus petit, en particulier lorsque des espèces légères qui diffusent fortement, comme H et H₂, sont présentes dans le mélange. En outre, le pas de temps diffusif étant proportionnel au carré de la taille des cellules, il peut devenir limitant lorsque des maillages très raffinés sont utilisés.

Comme pour le *CFL*, la valeur maximale du paramètre *Fo* permettant d’assurer la stabilité dépend du nombre de dimensions et du schéma de discrétisation spatiale utilisé (Tab. 3.11).

Pas de temps chimique

La présence du terme source $\dot{\omega}_\Phi$ peut parfois rendre la résolution de l’équation de transport de Φ très raide, et une condition supplémentaire sur le pas de temps doit être ajoutée.

Dans le cas particulier où Φ correspond à la fraction massique de l’espèce k , un pas de temps trop grand peut mener à une situation où une quantité de k plus grande que la quantité réellement présente localement est consommée, conduisant ainsi à des valeurs de fractions massiques négatives. Une telle situation se produit en général avec les espèces radicalaires, présentes dans le front de flamme.

On introduit donc un pas de temps supplémentaire, qu’on qualifie de “chimique” (le terme source étant dû aux réactions chimiques). Le pas de temps chimique global Δt^{chem} correspond au minimum du

pas de temps chimique calculé pour chacune des espèces présentes dans l'écoulement, pour $|\dot{\omega}_k(\mathbf{x})| > 0$:

$$\Delta t^{\text{chem}} = \min_{\mathbf{x},k} \left(\frac{\rho Y_k(\mathbf{x})}{|\dot{\omega}_k(\mathbf{x})|} \right) \quad (3.53)$$

En pratique, dans SiTCom-B, le pas de temps chimique est calculé comme suit pour $|\dot{\omega}_k(\mathbf{x})| > 0$:

$$\Delta t^{\text{chem}} = \min_{\mathbf{x},k} \left(\frac{a_{\text{tol}} + r_{\text{tol}} \rho Y_k(\mathbf{x})}{|\dot{\omega}_k(\mathbf{x})|} \right) \quad (3.54)$$

Le paramètre r_{tol} est une fraction du pas de temps chimique maximal théorique défini dans l'Eq. (3.53), et doit par conséquent être inférieur à 1. Le paramètre a_{tol} évite que la valeur du pas de temps ne devienne nulle lorsque la fraction massique Y_k tend vers 0. Sa valeur doit être inférieure au maximum de toutes les espèces présentes dans l'écoulement. Par la suite, on prendra $r_{\text{tol}} = 0.1$ et $a_{\text{tol}} = 1.0 \times 10^{-12} \text{ kg.m}^3$.

Finalement, le pas de temps limitant est le plus petit des trois pas de temps précédents :

$$\Delta t = \min(\Delta t^C, \Delta t^D, \Delta t^{\text{chem}}) \quad (3.55)$$

3.4.3 Solveur de chimie tabulée FPI

3.4.3.1 Equations de transport

Le solveur FPI repose sur la tabulation d'un certain nombre de grandeurs thermodynamiques, qui ne sont plus calculées à partir de la connaissance des fractions massiques des espèces du mécanisme cinétique, mais lues directement dans une table paramétrée par une variable d'avancement Y_c et la fraction de mélange Z . Ces grandeurs sont :

- les coefficients de transport (viscosité dynamique μ et conductivité thermique λ) ;
- les capacités thermiques massiques à volume constant c_v et à pression constante c_p ;
- la constante des gaz parfaits réduite r ;
- le terme source $\dot{\omega}_{Y_c}$ de l'équation de transport de Y_c .

La fraction de mélange Z est transportée suivant l'Eq. (2.9). La variable d'avancement Y_c est définie comme une combinaison linéaire des fractions massiques des espèces du mélange :

$$Y_c = \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \alpha_k Y_k \quad (3.56)$$

où $\alpha_k \in \mathbb{R}$. L'équation de transport de Y_c s'écrit :

$$\frac{\partial \rho Y_c}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho (u_i + V^c) Y_c) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D_{Y_c} \frac{\partial Y_c}{\partial x_i} \right) + \dot{\omega}_{Y_c} \quad (3.57)$$

où D_{Y_c} est le coefficient de diffusion de Y_c . En pratique, une variable d'avancement normalisée, notée c , est utilisée pour paramétrer la table, au lieu de Y_c . Elle est définie par :

$$c = \frac{Y_c}{Y_{c,eq}} \quad (3.58)$$

La valeur à l'équilibre de la variable d'avancement, notée $Y_{c,eq}$, dépend de Z . Les valeurs de $Y_{c,eq}(Z)$ sont stockées dans la table. L'équation de conservation de la quantité de mouvement est également résolue (Eq. (2.13)).

Dans la formulation bas-Mach de FPI, la température et la masse volumique sont simplement tabulées. Toutefois, dans le cas d'un code compressible comme SiTCom-B, les effets de compressibilité ne sont pas naturellement inclus dans la table, construite à partir de flammes générées à pression constante. Ainsi, la masse volumique ρ et la température T ne peuvent pas être directement lues dans la table :

$$\begin{aligned}\rho &\neq \rho^{tab}(Y_c, Z) \\ T &\neq T^{tab}(Y_c, Z)\end{aligned}\tag{3.59}$$

Pour remédier à ce problème, la masse volumique ρ est simplement transportée (Eq. (2.18)). Plusieurs méthodes ont été développées pour traiter la difficulté restante, qui est le calcul de la température. Deux d'entre elles sont brièvement présentées dans la section 3.4.3.4. Dans tous les cas, la température est déduite de l'énergie, cette dernière étant obtenue par la résolution de son équation de transport.

3.4.3.2 Calcul du pas de temps

Le pas de temps convectif est calculé suivant l'Eq. (3.49). Une valeur du pas de temps diffusif est calculée suivant l'Eq. (3.52) pour l'équation de conservation de la quantité de mouvement, de la fraction de mélange, de la variable d'avancement et de l'énergie. Le pas de temps diffusif sélectionné est la plus petite des quatre valeurs. Enfin, un pas de chimique est calculé pour Y_c , en utilisant l'Eq. (3.54).

Comme pour le solveur multi-espèces, le pas de temps retenu pour la simulation est la valeur minimale sélectionnée parmi les pas de temps convectif, diffusif et chimique. En pratique, le critère limitant est le critère CFL.

3.4.3.3 Génération de la table

Comme évoqué précédemment, la méthode FPI repose sur la tabulation d'un certain nombre de grandeurs physiques de l'écoulement. La première étape est la construction d'une librairie de flammes laminares 1D prémélangées, calculées avec le code REGATH. Le solveur FPF (*Freely Propagating Flames*) de REGATH résout les équations de transport 1D stationnaire des variables primitives T , Y et U . La pression est constante et fixée par l'utilisateur, et la masse volumique est obtenue à partir de la loi des gaz parfaits. Un algorithme itératif de type Newton est utilisé pour obtenir la solution finale stationnaire convergée à partir d'une solution initiale. Pour fournir une solution correctement convergée, ce type d'algorithme impose que la solution finale et la solution initiale soient assez proches. Une solution initiale à $\phi = 1$ est fournie au solveur, qui calcule ensuite une série de flammes jusqu'à ϕ_R par pas successifs de $\Delta\phi$, et jusqu'à ϕ_L par pas de $-\Delta\phi$. Les grandeurs ϕ_L correspondent respectivement aux limites d'inflammabilité pauvre (L pour "*lean*") et riche (R pour "*rich*"). Leur valeurs sont déterminées expérimentalement, et ont été données précédemment (Tab. 3.10). Par la suite on prendra pour le méthane $\phi_L = 0.6$ et $\phi_R = 1.4$.

La valeur de $\Delta\phi$ doit être assez faible, d'une part pour permettre la convergence de l'algorithme de Newton, et d'autre part pour que la table soit assez résolue dans la direction Z , en particulier dans la zone de flamme. En pratique, la seconde condition impose la valeur de $\Delta\phi$ la plus faible.

À ce stade, une série de flamme 1D a été calculée pour plusieurs richesses $\phi \in [\phi_L, \phi_R]$. Les grandeurs à tabuler sont accessibles dans l'espace physique. Elles sont notées $\varphi_{1D}(x, \phi)$. Un simple changement de repère permet de les exprimer sous la forme $\varphi_{1D}(c, Z)$.

La table est ensuite complétée en dehors du domaine d'inflammabilité ($\phi \in [0, \phi_L] \cup [\phi_R, +\infty[$, c'est-à-dire $Z \in [0, Z_L] \cup [Z_R, 1]$). Dans cette zone, les flammes sont interpolées entre le mélange frais et l'équilibre thermodynamique, calculé avec le code EQUIL [142]. Ce code est une interface entre

Chemkin [105], qui permet d'interpréter les données brutes des mécanismes cinétiques afin de calculer les grandeurs thermodynamiques et les propriétés de transport des espèces, et STANJAN [184], qui met en œuvre un algorithme basé sur le calcul du potentiel chimique des éléments atomiques pour calculer rapidement des états d'équilibre thermodynamique. L'utilisateur indique le mélange initial et un couple de variables qu'il souhaite garder constantes entre les états initial et final (par exemple l'entropie et le volume, l'enthalpie et la pression, l'entropie et la pression, etc). Pour la construction de la table FPI, les données d'entrée du code sont la température des gaz frais, la pression et la composition du mélange frais (*i.e.* pour $c = 0$). Pour chaque valeur de Z , le code EQUIL donne en sortie la composition et la température du mélange à l'équilibre (pour $c = 1$), calculées à pression P et enthalpie h constantes. Toutes les valeurs des autres grandeurs à tabuler dans les gaz frais, notées $\varphi_u(Z)$ (respectivement dans le mélange à l'équilibre, notées $\varphi_{eq}(Z)$), sont déduites de la température et de la composition des gaz frais (respectivement du mélange à l'équilibre). Les valeurs des variables tabulées entre $c = 0$ et $c = 1$ sont obtenues avec une interpolation linéaire. Finalement, la table FPI est définie par :

$$\varphi_{tab}(c, Z) = \begin{cases} \varphi_{1D}(c, Z), \forall Z \in [Z_L, Z_R] \\ \varphi_u(Z) + c \times (\varphi_{eq}(Z) - \varphi_u(Z)), \forall Z \in [0, Z_L[\cup]Z_R, 1] \end{cases} \quad (3.60)$$

Un extrait de table FPI est donné à titre d'exemple sur la Fig. 3.12.

3.4.3.4 Calcul de la température

L'énergie sensible e_s est reliée à l'énergie totale non-chimique E , transportée, par la relation $e_s = E - e_c$, où e_c est l'énergie cinétique de l'écoulement. Elle est utilisée pour déduire la température T :

$$e_s = \int_{T_0}^T c_v(T') dT' - \frac{RT_0}{W} \quad (3.61)$$

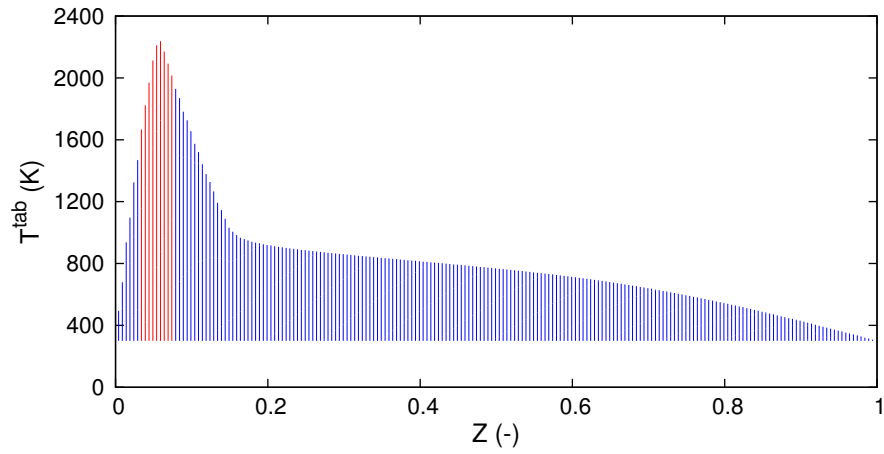
Dans le cas des solveurs de chimie détaillée où toutes les espèces sont transportées, c_v est simplement calculé avec la relation $c_v = \sum_{k=1}^{N_{sp}} c_{v,k} Y_k$, puis la température est déduite de l'Eq. (3.61) ci-dessus. Dans le cas d'un solveur tabulé, l'utilisation de cette technique nécessiterait la tabulation de toutes les espèces présentes dans le mélange, ce qui peut conduire à des tailles de table rédhibitoires. Une méthode utilisée par Domingo *et al.* [47, 49] consiste à réduire le set d'espèces utilisé pour calculer la température, permettant donc de diminuer le nombre d'espèces à tabuler :

$$e_s \approx \sum_{k=1}^{N_{tab}} \left(Y_k^{tab}(Y_c, Z) \int_{T_0}^T c_{v,k}(T') dT' \right) - r^{tab} T_0 \quad (3.62)$$

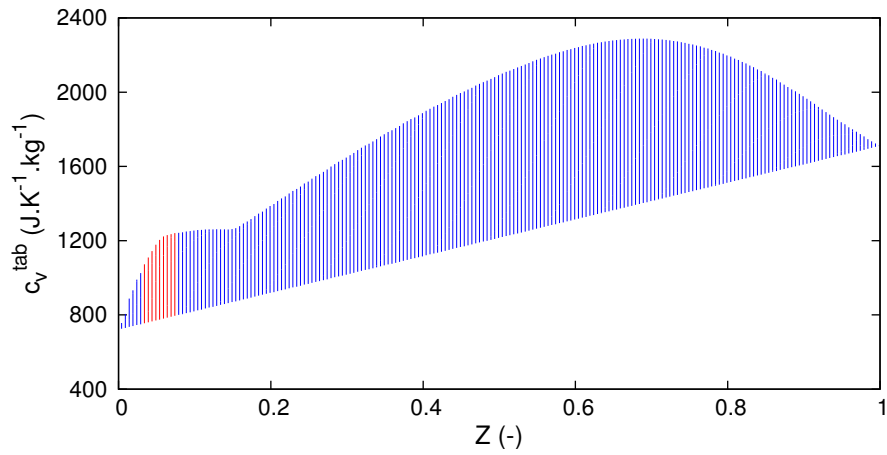
où $N_{tab} < N_{sp}$. Le nombre d'espèces sélectionnées doit être assez faible pour fournir une table la plus légère possible, mais doit tout de même être suffisant pour permettre une reconstruction correcte de l'énergie.

Vicquelin *et al.* [229] ont proposé la méthode TTC (*Tabulated Thermo-chemistry for Compressible flows*), basée sur la correction de la valeur tabulée T^{tab} , pour prendre en compte les effets de compressibilité. Cette correction est basée sur le calcul de la différence Δe_s entre l'énergie sensible tabulée e_s^{tab} et l'énergie sensible e_s issue de l'énergie totale non-chimique E transportée :

$$\begin{aligned} \Delta e_s &= e_s - e_s^{tab} \\ &= \left(\int_{T_0}^T c_v(T') dT' - r T_0 \right) - \left(\int_{T_0}^{T^{tab}} c_v(T') dT' - r^{tab} T_0 \right) \end{aligned} \quad (3.63)$$



(a) Température



(b) Capacité calorifique à volume constant

Figure 3.12 – Température et capacité calorifique issues d’une table FPI, en fonction de la fraction de mélange Z . Une ligne correspond à une flamme calculée entre $c = 0$ et $c = 1$ (— : flammes dans le domaine de flammabilité, calculées avec le code 1D REGATH, — : flammes interpolées entre le mélange frais et l’équilibre calculé avec EQUIL, constituant la prolongation de la table).

La constante des gaz parfaits réduite r et la capacité calorifique à volume constant c_v sont données par la table. On a donc $r = r^{tab}$ et $c_v(T^{tab}) = c_v^{tab}$. L'équation (3.63) se réduit à :

$$\Delta e_s = \int_{T^{tab}}^T c_v(T') dT' \quad (3.64)$$

Il est possible d'effectuer un développement de Taylor de $c_v(T)$ au voisinage de T^{tab} . On suppose qu'en présence de perturbations acoustiques dont l'amplitude reste modérée, la différence $T - T^{tab}$ est faible, et que par conséquent, c_v reste constant sur l'intervalle $[T, T^{tab}]$. Ainsi, en conservant uniquement le premier terme du développement de Taylor, on peut exprimer Δe_s par :

$$\Delta e_s \approx c_v^{tab}(T - T^{tab}) \quad (3.65)$$

Finalement, on peut exprimer la température corrigée T par :

$$T = T^{tab} + \frac{e_s - e_s^{tab}}{c_v^{tab}} \quad (3.66)$$

Cette méthode TTC est utilisée dans le solveur FPI de SiTCom-B. En pratique, comme dans les travaux de Vicquelin *et al.* [229], c'est l'équation de conservation de l'énergie totale chimique e_t qui est résolue (Eq. (2.28)). Elle est rappelée ci-dessous, en l'absence de force volumique et de source de chaleur externe :

$$\frac{\partial \rho e_t}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i e_t) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i} \right) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\sigma_{ij} u_i) \quad (3.67)$$

Exprimé sous cette forme, le calcul du second terme diffusif contenant les enthalpies h_k requiert la tabulation d'une quantité importante de données. Pour s'affranchir du calcul de ce terme, une transformation est opérée sur l'Eq. (3.67), afin de l'exprimer différemment. Dans un premier temps, le flux lié à la diffusion des espèces est calculé en utilisant l'approximation de Hirschfelder et Curtiss (Eq (2.40)) :

$$\begin{aligned} \rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i} &= \sum_{k=1}^{N_{sp}} -\rho h_k D_k \frac{W_k}{W} \frac{\partial X_k}{\partial x_i} \\ &= \sum_{k=1}^{N_{sp}} -\rho h_k D_k \left(\frac{\partial Y_k}{\partial x_j} + \frac{Y_k}{W} \frac{\partial W}{\partial x_i} \right) \end{aligned} \quad (3.68)$$

On considère que l'influence du terme contenant le gradient de masse molaire du mélange est négligeable devant le terme contenant le gradient des espèces :

$$\sum_{k=1}^{N_{sp}} -\rho h_k D_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \gg \sum_{k=1}^{N_{sp}} -\rho h_k D_k \frac{Y_k}{W} \frac{\partial W}{\partial x_i} \quad (3.69)$$

Cette hypothèse a été vérifiée en tous points d'une flamme stoechiométrique méthane/air à pression atmosphérique (Fig. 3.13). L'équation (3.68) devient :

$$\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i} = \sum_{k=1}^{N_{sp}} -\rho h_k D_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \quad (3.70)$$

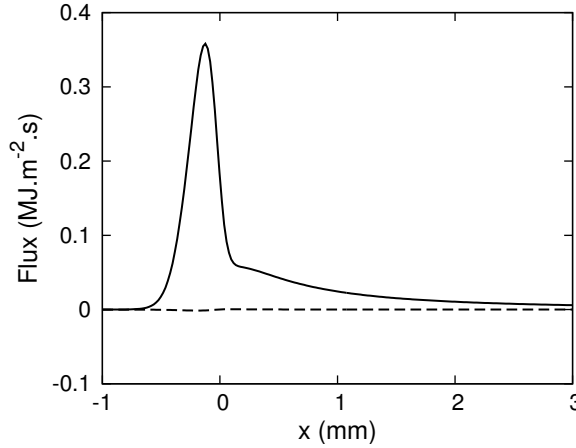


Figure 3.13 – Comparaison des termes de l'Eq. (3.69), calculés dans une flamme 1D méthane/air ($\Phi_u = 1$, $P_u = 1$ bar, $T_u = 300$ K), avec le solveur multi-espèces de SiTCom-B.

$$\text{—} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} -\rho h_k D_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j}, \text{---} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} -\rho h_k D_k \frac{Y_k}{W} \frac{\partial W}{\partial x_i}$$

Avec l'hypothèse d'un nombre de Lewis unitaire pour toutes les espèces ($D_k = \lambda/\rho C_p, \forall k \in [1, N_{\text{sp}}]$) on obtient :

$$\rho \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k Y_k V_{k,i} = -\frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \quad (3.71)$$

D'autre part, on a :

$$\begin{aligned} \frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h}{\partial x_j} &= \frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial}{\partial x_j} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k Y_k \\ &= \frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \left(\frac{\partial h_k}{\partial x_j} Y_k + h_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \right) \\ &= \frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} c_{p,k} \frac{\partial T}{\partial x_j} Y_k + \frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \end{aligned} \quad (3.72)$$

ce qui permet d'écrire :

$$\frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h}{\partial x_j} = \lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} + \frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \quad (3.73)$$

En additionnant les équations (3.71) et (3.73), l'équation de conservation de e_t (Eq. (3.67)) peut se réécrire :

$$\frac{\partial \rho e_t}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i e_t) = \frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h}{\partial x_j} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\sigma_{ij} u_i) \quad (3.74)$$

avec $h = e + P/\rho$, où P est calculée avec la loi des gaz parfaits, en utilisant la masse volumique transportée, la constante des gaz parfaits réduite tabulée, et la température tabulée corrigée avec la méthode TTC :

$$P = \rho r_{\text{tab}} T \quad (3.75)$$

Cette forme de l'équation de l'énergie est plus pratique que la précédente, car elle ne dépend que de grandeurs relatives au mélange, au lieu de nécessiter des données sur les espèces individuelles.

Dans les travaux de Vicquelin *et al.*, le nombre de Lewis est supposé égal à 1. Cette hypothèse est utilisée dans l'Eq. (3.71) pour exprimer le flux diffusif de l'équation de transport de l'énergie. Elle est

également utile pour calculer les coefficients de transport D_Z et D_{Y_c} des équations de conservation de Z et Y_c :

$$D_Z = D_{Y_c} = \frac{\lambda}{\rho c_p} \quad (3.76)$$

L'hypothèse d'un nombre de Lewis unitaire a été appliquée avec succès dans de nombreuses études pour simuler des écoulements turbulents [179, 122, 107, 119, 6, 118, 66]. Toutefois, dans les différentes simulations d'écoulements laminaires présentées dans ce manuscrit, on peut s'attendre à des effets plus importants de la diffusion différentielle. Leur influence sur les simulations FPI est évaluée dans la section suivante.

3.4.3.5 Prise en compte des effets de diffusion différentielle

Dans cette section, l'impact de l'hypothèse de nombre de Lewis unitaire dans la formulation du solveur FPI est évalué sur le calcul d'une flamme laminaire où la diffusion différentielle est prise en compte (nombre de Lewis variables pour chaque espèce). Les causes possibles des écarts observés sont analysées et des modifications du solveur FPI sont proposées.

Impact de l'hypothèse du nombre de Lewis unitaire dans la formulation du solveur FPI

Dans un premier temps, le solveur FPI est utilisé dans sa version originale, présentée dans la section précédente (D_{Y_c} calculé avec l'Eq. (3.76) et énergie e_t transportée suivant l'Eq. (3.83)), pour calculer des flammes laminaires 1D méthane/air, où :

- les effets de diffusion différentielle sont négligés lors de la génération de la librairie de flammes 1D servant à construire la table ($D_k = \lambda/(\rho c_p)$, $\forall k \in [1, N_{sp}]$), pour valider l'implémentation du solveur FPI initial de SiTCom-B. Les résultats sont comparés à une flamme calculée en chimie détaillée avec des nombres de Lewis égaux à 1.
- les effets de diffusion différentielle sont pris en compte dans la table, afin d'évaluer l'erreur induite par l'hypothèse du nombre de Lewis unitaire. Les résultats sont comparés à une flamme calculée en chimie détaillée avec des nombres de Lewis variables.

Ce premier test est repéré par le numéro 1 dans les tableaux 3.12 et 3.13. Les fractions massiques d'espèces majoritaires (CO, CO₂, H₂O) et minoritaires (OH), la température et la pression dans la flamme sont comparées avec des résultats de référence, obtenus avec le solveur multi-espèces de SiTCom-B (Fig. 3.14 et 3.15). La vitesse de flamme laminaire, calculée avec l'Eq. (3.28) basée sur Y_c , est donnée dans le tableau 3.12.

La flamme sans diffusion différentielle est correctement reproduite avec le solveur FPI. Lorsque ces derniers sont pris en compte, les fractions massiques des produits et la température restent correctement prédites dans les gaz brûlés car l'équilibre ($c = 1$) est atteint avec les deux solveurs, mais la vitesse de flamme est surestimée d'environ 15%.

Analyse des sources d'erreur

Deux causes d'erreur sont mises en avant. La première est liée à l'hypothèse de nombre de Lewis unitaire pour le calcul de D_{Y_c} . Le nombre de Lewis des espèces incluses dans le calcul de Y_c (CO et CO₂) étant de l'ordre de 1.4, la valeur de D_{Y_c} est surestimée en fixant $Le_{Y_c} = 1$, et la largeur du profil de Y_c est surévaluée. Ainsi, bien qu'ils soient identiques dans l'espace des phases, dans l'espace physique le profil FPI du terme source $\dot{\omega}_{Y_c}$ de la variable d'avancement est plus large que le profil de référence obtenu avec le solveur multi-espèce (Fig. 3.16), expliquant l'erreur sur la vitesse de flamme.

La deuxième source d'erreur est l'hypothèse du nombre de Lewis unitaire effectuée dans l'expression du flux diffusif de l'énergie, dans l'Eq. (3.71). L'égalité présentée dans cette équation n'est pas vérifiée

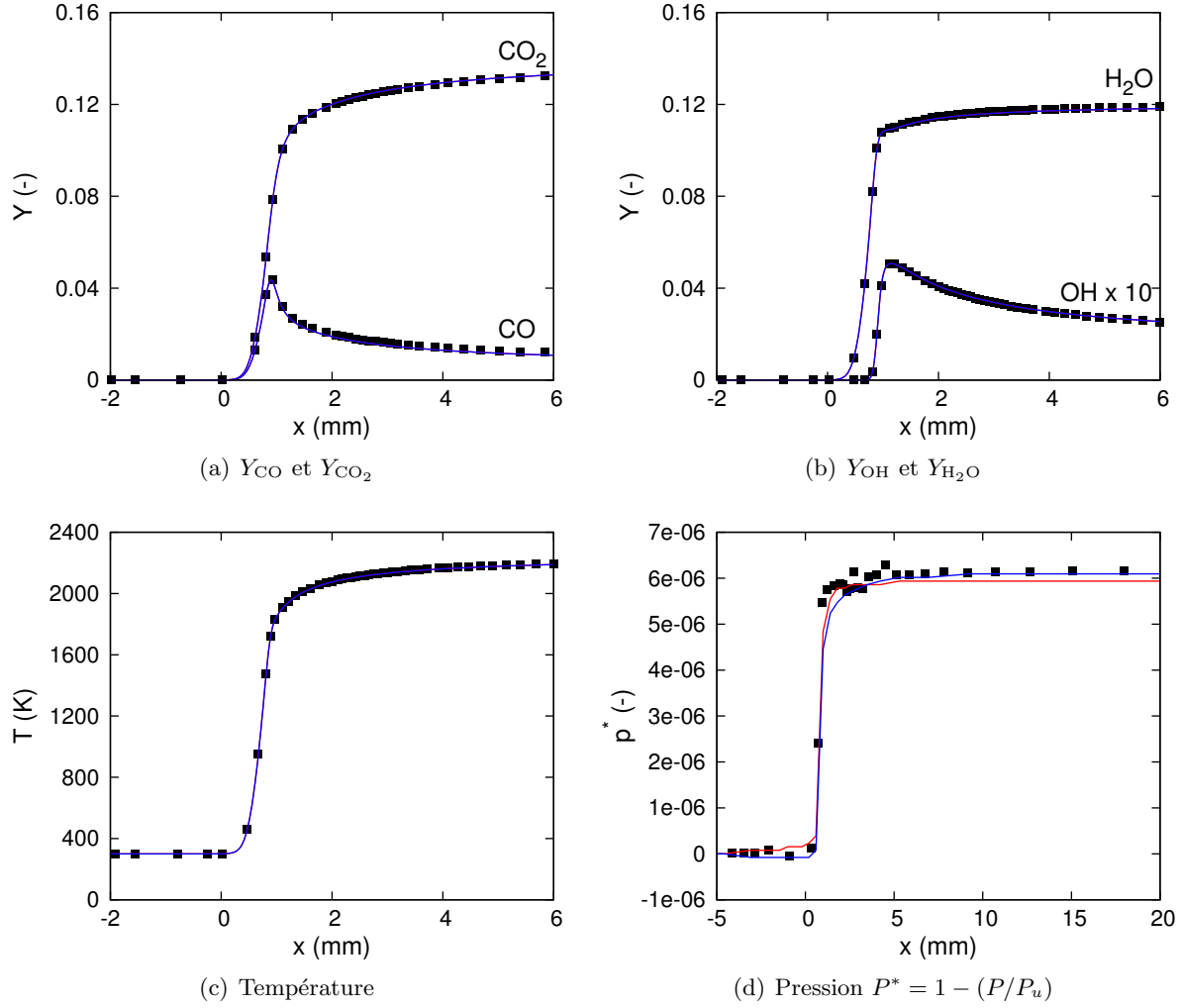


Figure 3.14 – Structure d’une flamme laminaire 1D méthane/air avec $D_k = \lambda/(\rho c_p)$, $\forall k \in [1, N_{sp}]$ ($\Phi_u = 1$, $P_u = 1$ bar, $T_u = 300$ K), calculée avec le solveur multi-espèces (■) et le solveur FPI (lignes : — méthode n°1, — n°3).

Solveur	Sans diffusion différentielle ($D_k = \lambda/(\rho c_p)$, $\forall k \in [1, N_{sp}]$)	Avec diffusion différentielle
Multi-espèces		
Référence	0.294	0.365
FPI		
1 (e_t , $Le_{Y_c} = 1$)	0.292 (-0.7%)	0.420 (+15.1%)
2 (e_t , $Le_{Y_c} \neq 1$)	-	0.378 (+3.6%)
3 (E , $Le_{Y_c} = 1$)	0.292 (-0.7%)	0.420 (+15.1%)
4 (E , $Le_{Y_c} \neq 1$)	-	0.367 (+0.5%)
5 (E , $Le_{Y_c} = 1$, flux diff. $\lambda \nabla T$)	-	0.366 (+0.3%)

Tableau 3.12 – Vitesse de propagation d’une flamme laminaire 1D méthane/air ($\Phi_u = 1$, $P_u = 1$ bar, $T_u = 300$ K), avec et sans diffusion différentielle, évaluée avec le solveur multi-espèces et le solveur FPI. La vitesse de flamme est calculée avec l’Eq. (3.28) en utilisant la variable d’avancement Y_c . Les numéros indiqués pour le solveur FPI correspondent aux différentes variantes du solveur, détaillées dans le tableau 3.13.

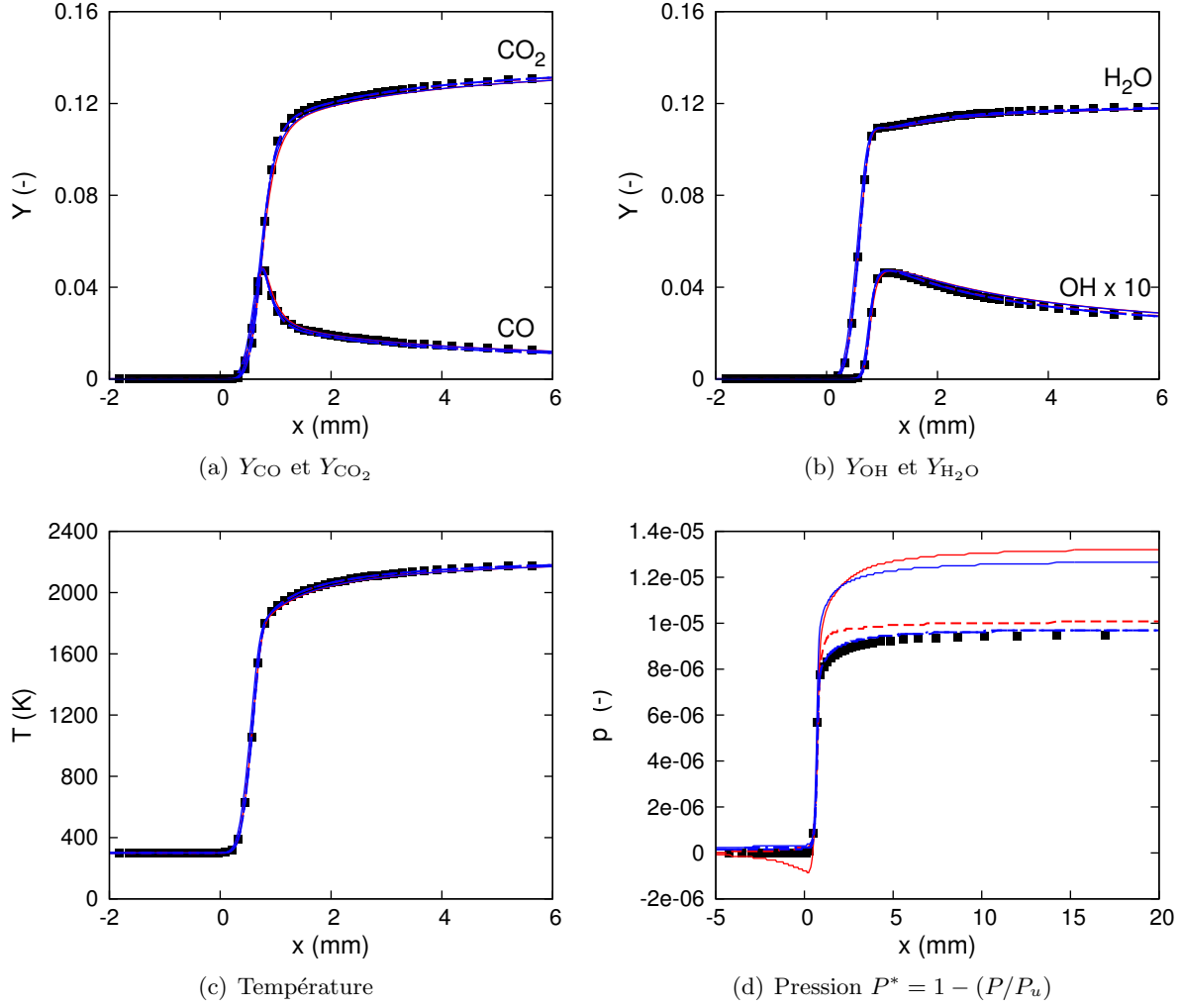


Figure 3.15 – Structure d’une flamme laminaire 1D méthane/air avec diffusion différentielle des espèces ($\Phi_u = 1, P_u = 1$ bar, $T_u = 300$ K), calculée avec le solveur multi-espèces ($\blacksquare$) et le solveur FPI (lignes : --- méthode n°1, --- n°2, --- n°3, --- n°4, --- n°5).

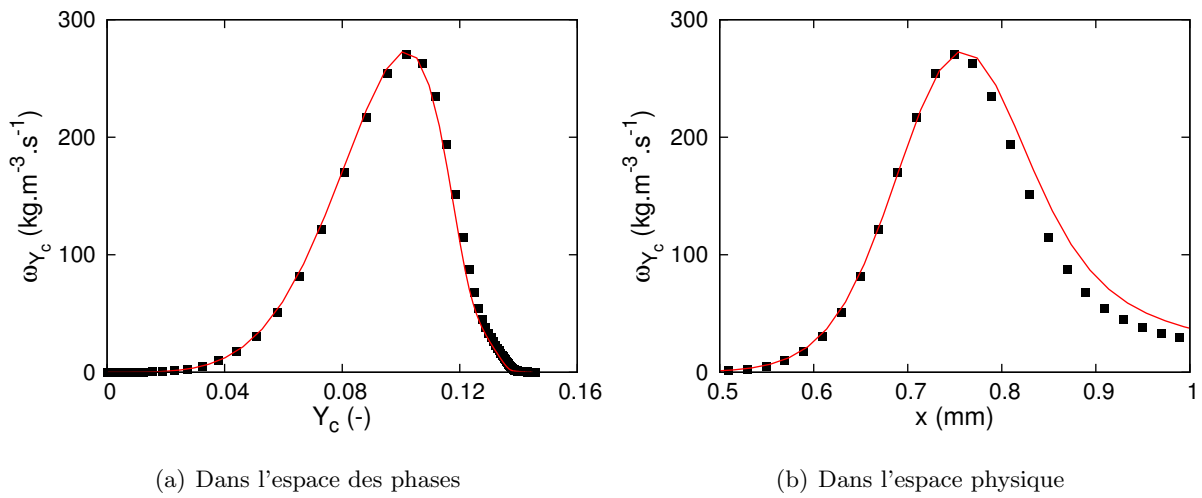


Figure 3.16 – Terme source de la variable d’avancement dans une flamme laminaire 1D méthane/air avec diffusion différentielle ($\Phi_u = 1, P_u = 1$ bar, $T_u = 300$ K), calculé avec le solveur multi-espèces ($\blacksquare$) et avec le solveur FPI dans sa version initiale (méthode n°1)(---).

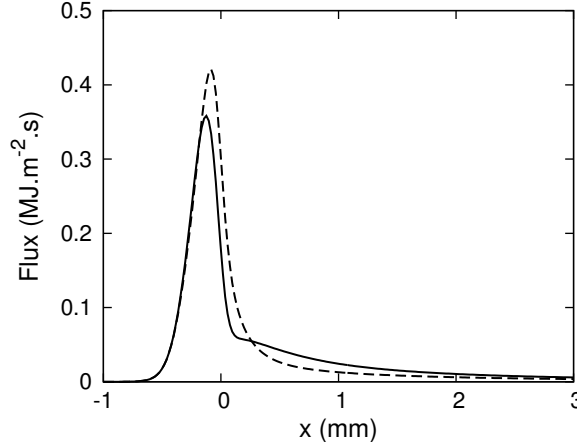


Figure 3.17 – Comparaison des termes de l'Eq. (3.71), calculés dans une flamme 1D méthane/air ($\Phi_u = 1, P_u = 1 \text{ bar}, T_u = 300 \text{ K}$) avec diffusion différentielle, avec le solveur multi-espèces de SiTCom-B. — $\rho \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k Y_k V_{k,i}$, --- $-\frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} h_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_j}$

lorsque la diffusion différentielle est considérée (Fig. 3.17).

Modifications du solveur FPI pour traiter la diffusion différentielle des espèces

Le calcul de D_{Y_c} est amélioré en prenant en compte les vitesses de diffusion des espèces utilisées pour construire la variable d'avancement [133] :

$$D_{Y_c} = -\frac{1}{\nabla Y_c} \left(V^c Y_c + \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \alpha_k V_k Y_k \right) \quad (3.77)$$

où V^c est la vitesse de correction nécessaire pour assurer la conservation de la masse. Le détail des calculs nécessaires pour aboutir à cette expression est donné dans l'annexe de la thèse de S. Nambully [156]. Dans [224], Verhoeven *et al.* proposent une expression similaire, en définissant une relation entre le nombre de Lewis de la variable d'avancement, les gradients et les nombres de Lewis individuels des espèces impliquées dans la construction de la variable d'avancement. La valeur de $D_{Y_c}(c, Z)$ est stockée dans la table FPI. Les vitesses de diffusion des espèces sont calculées à partir de l'approximation de Hirschfelder et Curtiss pour les flammes dans le domaine de flammabilité, pour $Z \in [Z_L, Z_R]$, nécessitant le calcul de gradients dans l'espace physique. De telles grandeurs ne sont toutefois pas disponibles dans la zone prolongée, les flammes étant interpolées entre le mélange frais et l'équilibre directement dans l'espace des phases. Pour remédier à ce problème, une transformation est appliquée à l'Eq. (3.77). En négligeant le gradient de masse molaire du mélange (approximation similaire à celle effectuée dans l'Eq. (3.69)), les vitesses de correction peuvent se réécrire en fonction des gradients de fractions massiques au lieu des gradients de masse molaire :

$$V_k = -D_k \frac{\nabla X_k}{X_k} \approx -D_k \frac{\nabla Y_k}{Y_k} \quad (3.78)$$

En négligeant la contribution de la vitesse de correction, l'équation (3.77) devient :

$$D_{Y_c} = \frac{1}{\nabla Y_c} \left(\sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \alpha_k D_k \nabla Y_k \right) \quad (3.79)$$

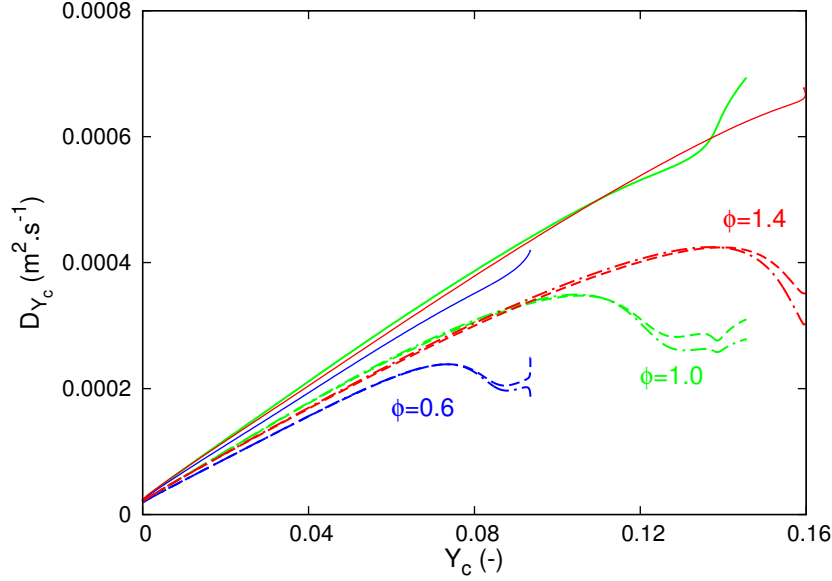


Figure 3.18 – Coefficient de diffusion D_{Y_c} en fonction de la variable d'avancement Y_c , évalué avec l'Eq. (3.76) ($Le_{Y_c} = 1$, —), avec l'Eq. (3.77) ($Le_{Y_c} \neq 1$, ---) et avec l'Eq. (3.81) ($Le_{Y_c} \neq 1$, -.-), pour 3 valeurs de richesse (0.6, 1.0, 1.4).

Le gradient de fraction massique est ensuite décomposé :

$$\nabla Y_k = \frac{\partial Y_k}{\partial Y_c} \nabla Y_c \quad (3.80)$$

ce qui permet finalement d'écrire :

$$D_{Y_c} = \left(\sum_{k=1}^{N_{sp}} \alpha_k \frac{\partial Y_k}{\partial Y_c} D_k \right) \quad (3.81)$$

Dans cette expression de D_{Y_c} , les gradients dans l'espace physique ∇Y_c et ∇Y_k ont été remplacés par la dérivée $\partial Y_k / \partial Y_c$, dont la valeur est accessible en tout point de l'espace des phases (en particulier $\forall Z \in [0, 1]$). Pour éviter d'obtenir des valeurs incorrectes de D_{Y_c} lorsque la dérivée $\partial Y_k / \partial Y_c$ devient négative, l'expression suivante est utilisée en pratique :

$$D_{Y_c} = \left(\sum_{k=1}^{N_{sp}} \alpha_k \left| \frac{\partial Y_k}{\partial Y_c} \right| D_k \right) \quad (3.82)$$

L'équation (3.82) est donc en pratique utilisée pour calculer $D_{Y_c}(c, Z)$ lors de l'étape de la construction de la table. Notons en outre que les Eq. (3.77) et (3.82) fournissent des valeurs quasiment identiques de D_{Y_c} dans le domaine de flammabilité (Fig. 3.18), validant ainsi le choix de l'utilisation de l'Eq. (3.82).

La figure 3.18 montre par ailleurs que l'hypothèse $Le_{Y_c} = 1$ conduit à des valeurs fortement surestimées du coefficient D_{Y_c} , et confirme la nécessité d'utiliser l'Eq. (3.82) pour évaluer ce dernier.

Pour limiter l'influence de l'hypothèse de nombre de Lewis unitaire dans l'expression du flux diffusif de l'énergie, la variable e_t est remplacée par E . Une équation de transport similaire à l'Eq. (3.83) est résolue :

$$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho u_i E) = \frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h_s}{\partial x_j} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\sigma_{ij} u_i) + \dot{\omega}_E \quad (3.83)$$

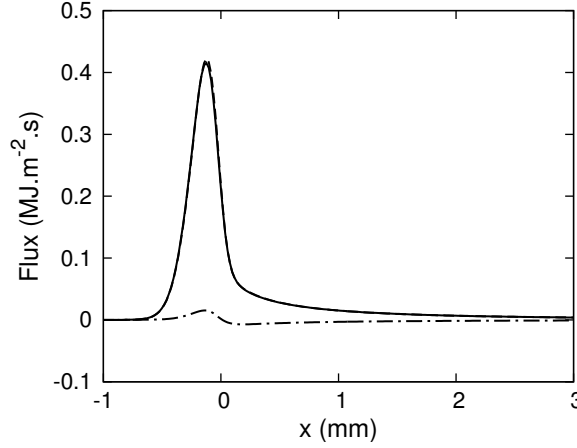


Figure 3.19 – Comparaison des flux diffusifs de l'équation de transport de E , calculés dans une flamme 1D méthane/air ($\Phi_u = 1, P_u = 1$ bar, $T_u = 300$ K) avec diffusion différentielle, avec le solveur multi-espèces de SiTCom-B. --- $\lambda \frac{\partial T}{\partial x_j}$, -.- $\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_{s,k} Y_k V_{k,i}$, — $\frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h_s}{\partial x_j}$ (flux exprimé avec une hypothèse de Le unitaire).

Comme pour e_t , on a effectué une hypothèse de nombre de Lewis unitaire pour reformuler le terme $\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i}$ et ainsi écrire :

$$\frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h_s}{\partial x_j} = \lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} + \frac{\lambda}{c_p} \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_{s,k} \frac{\partial Y_k}{\partial x_j} \quad (3.84)$$

Dans ce cas, l'énergie de formation qui conduit au dégagement de chaleur n'est plus incluse dans le flux diffusif $\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i}$ mais dans le terme source $\dot{\omega}_E$. Ce terme devient donc dans ce cas négligeable par rapport au terme $\lambda \nabla T$, et l'impact de l'hypothèse de Lewis unitaire est fortement réduit (Fig. 3.19). On a donc :

$$\frac{\lambda}{c_p} \frac{\partial h_s}{\partial x_j} \approx \lambda \frac{\partial T}{\partial x_j} \quad (3.85)$$

Chacun des deux membres de cette égalité peut être utilisé de façon équivalente comme flux diffusif pour le transport de E .

Une autre option consisterait à exprimer les vitesses de correction V_k avec les gradients des fractions massiques (Eq. (3.78)) et à décomposer ces derniers avec l'Eq. (3.80) :

$$\begin{aligned} \rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k Y_k V_{k,i} &\approx -\rho \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k D_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_i} \\ &= -\rho \frac{\partial Y_c}{\partial x_i} \sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k D_k \frac{\partial Y_k}{\partial Y_c} \end{aligned} \quad (3.86)$$

Exprimé ainsi, le flux diffusif ne nécessite plus l'hypothèse de nombre de Lewis unitaire, et requiert uniquement la tabulation du terme $\sum_{k=1}^{N_{sp}} h_k D_k (\partial Y_k / \partial Y_c)$. Cette méthode n'a cependant pas été testée.

Les deux modifications qui viennent d'être présentées ont été testées séparément puis conjointement, pour évaluer l'influence individuelle de l'hypothèse de nombre de Lewis dans le transport de Y_c et dans le transport de l'énergie. Les tests qui ont été effectués sont regroupés dans le tableau 3.13.

La comparaison avec les résultats obtenus avec le solveur multi-espèces (Fig. 3.14 et 3.15) révèle qu'une bonne prédiction de la vitesse de flamme dépend majoritairement du calcul de D_{Y_c} , et dans une

n°	Variable utilisée pour l'énergie	D_{Y_c}	Flux diffusif du transport de l'énergie
1 (initial)	e_t	$\frac{\lambda}{\rho c_p}$	$\frac{\lambda}{C_p} \frac{\partial h}{\partial x_j}$
2	e_t	Eq. (3.82)	$\frac{\lambda}{C_p} \frac{\partial h}{\partial x_j}$
3	E	$\frac{\lambda}{\rho c_p}$	$\frac{\lambda}{C_p} \frac{\partial h_s}{\partial x_j}$
4	E	Eq. (3.82)	$\frac{\lambda}{C_p} \frac{\partial h_s}{\partial x_j}$
5	E	Eq. (3.82)	$\lambda \frac{\partial T}{\partial x_j}$

Tableau 3.13 – Différentes améliorations du solveur FPI envisagées pour traiter la diffusion différentielle des espèces.

moindre mesure, du choix de la variable transportée pour la conservation de l'énergie. La vitesse de flamme, les fractions massiques des produits et la température de flamme sont parfaitement reproduits par FPI en considérant la diffusion différentielle des espèces dans le transport de Y_c et en transportant la variable E . Ce choix sera conservé pour les prochaines simulations effectuées avec le solveur FPI.

3.4.4 Optimisation du code

La simulation numérique des écoulements réactifs nécessite des ressources de calcul extrêmement importantes. Par conséquent, le temps nécessaire à l'exécution d'une simulation est très souvent un paramètre clé, qui doit être pris en compte par l'utilisateur du code de calcul. La durée d'un calcul est contrôlée par deux paramètres :

1. le pas de temps minimal pour assurer la stabilité des schémas numériques, qui définit le nombre d'itérations à effectuer pour atteindre un temps physique simulé donné.
2. le temps mis par le code pour faire une itération.

Dans le cas des écoulements réactifs, le premier point est généralement contrôlé par la chimie, et des modèles physiques et/ou mathématiques (tels que FPI, HTTC, et les autres modèles présentés dans le chapitre 1) sont utilisés pour augmenter le plus possible la valeur du pas de temps chimique. Dans cette section est traité le second point.

Le temps de calcul par itération dépend de paramètres matériels indépendants de l'utilisateur d'une part (fréquence d'horloge des processeurs, débit d'information entre les noeuds constituant le super-calculateur, etc) et de la complexité des modèles physiques sélectionnés d'autre part (nombre d'espèces et de réactions chimiques du mécanisme cinétique, modèle de combustion). Une fois ces grandeurs fixées par le choix d'une machine de calcul et des modèles, la durée d'une itération peut toutefois être réduite grâce à l'optimisation du code de calcul. Ce processus a pour objectif d'améliorer un certain nombre de points critiques pour les performances du code. Les axes d'amélioration sont nombreux. Ils incluent notamment les optimisations permettant d'exploiter au mieux les performances des processeurs (vectorisation, pré-lecture (ou *prefetching*) des données), les ré-écritures du code pour qu'une instruction donnée soit effectuée avec le moins de cycles d'horloge possible, ou encore le choix des architectures matérielles et des méthodes de parallélisation (OpenMP, MPI, calcul sur GPU, etc).

Les compilateurs actuels sont capables de prendre automatiquement en charge une grande partie de ces optimisations. Différents niveaux d'optimisation, généralement désignés par O0, O1, O2 et O3

(O0 correspondant à l'absence d'optimisation et O3 au niveau d'optimisation maximum) sont proposés par les compilateurs. Le niveau maximum O3 a été utilisé dans ces travaux.

Ne pouvant être gérées par le compilateur, certaines opérations doivent toutefois être faites manuellement. Notons qu'un compromis doit être fait entre le temps passé par le développeur à optimiser le code, la clarté et la lisibilité du code après modification, et le gain final de performances apporté par l'opération d'optimisation. Certaines optimisations, comme celles destinées à améliorer la vectorisation des boucles, peuvent nécessiter des compétences élevées en programmation et coûter un temps important au développeur, sans apporter systématiquement un gain de performances considérables au code (cela dépend fortement de la structure du code). De telles méthodes d'optimisation n'ont donc pas été envisagées dans cette étude.

Avant la présente thèse, le solveur de chimie multi-espèces transportées de SiTCom-B n'a été utilisé qu'avec des mécanismes cinétiques réduits (voir les thèses de L. Bouheraoua [17] et de B. Farcy [61]). Ce solveur n'avait donc jamais été mis en œuvre avec des mécanismes détaillés, et conduisait dans sa version initiale à des temps de calcul extrêmement élevés (voir paragraphe suivant), rendant impossible l'exécution d'une simulation. L'étape d'optimisation du code s'est donc avérée indispensable. Notons que le solveur HTTC, basé sur le solveur de chimie détaillée, bénéficie également de ces optimisations. Le solveur FPI, dissocié du solveur multi-espèces, n'a quant à lui pas été modifié.

Dans un premier temps, une analyse des performances initiales du solveur de chimie détaillée transportée de SiTCom-B a été effectuée, lors de calculs sur un seul processeur, afin de détecter les zones critiques du code lors de son exécution séquentielle. Cette étude, présentée dans le premier paragraphe, a mis en évidence trois zones du code particulièrement coûteuses en ressources de calcul. Les solutions apportées pour optimiser ces zones sont exposées dans un second paragraphe, dans lequel une nouvelle analyse des performances du code optimisé révèle un écart anormal de performances entre le compilateur *open-source* GNU³ et le compilateur commercial d'Intel. Le troisième paragraphe montre les causes de cet écart et les solutions employées pour retrouver des performances comparables avec les deux compilateurs. Enfin, dans un quatrième paragraphe, les performances parallèles du code optimisé sont évaluées à l'aide de tests de *scaling*. Ces derniers permettent de constater une dégradation importante des performances du code optimisé, entre 1 et 16 processeurs. Ce phénomène semble mettre en avant une dépendance des performances du code aux temps d'accès à la mémoire.

3.4.4.1 Analyse des performances de la version non-optimisée du solveur multi-espèces transportées

Le temps de calcul est quantifié grâce à une grandeur réduite appelée "efficacité réduite" (ou *reduced efficiency*), notée RE , et définie par :

$$RE = \frac{\Delta t_w}{N_{cell} \times N_{RK}} \quad (3.87)$$

avec N_{cell} le nombre de cellules traité par chaque processeur (le nombre de cellules total divisé par le nombre de processeur), et N_{RK} le nombre de sous-itération du schéma numérique d'avancement en temps de Runge-Kutta. Δt_w est le temps écoulé (*wall-time*) entre le début et la fin d'une itération du solveur. Il est relié au temps CPU, Δt_{CPU} , et au nombre de processeurs, N_{CPU} , par la relation $\Delta t_w = \Delta t_{CPU} / N_{CPU}$. Il est évalué à l'aide de la fonction `MPLWtime` de la librairie MPI. Ainsi définie, l'efficacité réduite RE donne une représentation "universelle" des performances du code, qui peut être comparée pour plusieurs simulations pour lesquelles le nombre de processeurs utilisés, le nombre de

3. GNU est un projet de système d'exploitation libre lancé en 1983, comprenant un ensemble de logiciels *open-source* (dont notamment des compilateurs Fortran, C, C++, etc). GNU est un acronyme récursif signifiant *GNU's not Unix*.

Machine	Processeurs	Compilateur	
		Intel	GNU
Occigen	Intel E5-2690 v3 (12 cœurs 2.6 GHz)	ifort 15.0.3	gfortran 4.4.7
Antares	Intel X5660 (6 cœurs 2.8 GHz) et X5560 (4 cœurs 2.8 GHz)	ifort 13.1.1	gfortran 4.4.7
Station de travail	Intel E5-2687W (8 cœurs 3.1 GHz)	ifort 15.0.0	gfortran 4.8.5

Tableau 3.14 – Caractéristiques des processeurs et compilateurs des machines de calcul utilisées au cours de cette thèse.

cellules ou encore N_{RK} peuvent être différents. Pour mesurer les performances de SiTCom-B dans ce paragraphe, RE a été moyenné sur 500 itérations, en excluant les phases de pre-processing, de post-processing et de lecture/écriture des solutions. Des valeurs “intermédiaires” de RE , correspondant aux performances de certaines zones spécifiques du code, sont également données par la suite. Δt_w est alors simplement remplacé par le temps d’exécution de la zone du code concernée.

Au cours de cette thèse, les ressources informatiques de plusieurs centres de calcul ont été exploitées : la machine Turing de l’IDRIS⁴, la machine Occigen du CINES⁵, la machine Antares du CRIANN⁶. Une station de travail personnelle a également été utilisée. Les caractéristiques des processeurs et les versions des compilateurs utilisés sont données dans le tableau 3.14.

Les performances séquentielles du code ont été évaluées avec la station de travail sur des flammes 1D pré-mélangées, en utilisant les mécanismes du méthane, du kérosène et de l’iso-octane présentés précédemment dans la section 1.7(b), mettant respectivement en jeu 29, 91 et 857 espèces. Notons que le mécanisme pour l’iso-octane à 857 espèces n’est aujourd’hui pas destiné à être utilisé dans le cadre de la CFD. Dans cette étude il n’est employé qu’à des fins de démonstration, pour montrer l’évolution du coût du calcul avec le nombre d’espèces impliquées dans la simulation.

Le compilateur GNU gfortran est utilisé. Le tableau 3.15 montre la répartition du temps de calcul au cours de ces tests. Trois tâches particulièrement coûteuses sont mises en évidence, et nécessitent plus de 90% du temps de calcul : l’évaluation des coefficients de diffusion, des variables thermodynamiques et des constantes de vitesse des réactions chimiques.

Lorsque le nombre d’espèces reste modéré, comme pour le méthane, le calcul des termes sources est prépondérant. Le calcul des constantes de vitesse en sens direct k_f , à partir de la loi d’Arrhenius (Eq. (3.12)), nécessite l’évaluation de fonctions exponentielles et puissances, dont chaque appel requiert un nombre important de cycles d’horloge du processeur, et est par conséquent coûteux. A titre d’exemple, une addition et une multiplication requièrent entre 1 et 3 FLOP, tandis que les divisions, racines carrées, puissances et exponentielles peuvent nécessiter plusieurs dizaines de FLOP [67]. Pour les mêmes raisons, le calcul des constantes de vitesse en sens indirect k_b (Eq. (3.15)) est également très coûteux.

Toutefois, le calcul des coefficients de diffusion (viscosité μ , conductivité thermique λ et diffusion moyenne des espèces D_k) domine totalement le temps de calcul pour les gros mécanismes cinétiques. Le nombre de coefficients de diffusion binaires D_{jk} , évalués à l’aide d’une fonction exponentielle via l’Eq. (3.47c), est en effet égal au carré du nombre d’espèces N_{sp} du mécanisme réactionnel. Lorsque N_{sp} est élevé, le temps attribué au calcul des D_{jk} devient alors supérieur à celui nécessaire au calcul

4. Institut du Développement et des Ressources en Informatique Scientifique.

5. Centre Informatique National de l’Enseignement Supérieur.

6. Centre Régional Informatique et d’Applications Numériques de Normandie.

Tâche	Mécanisme					
	Méthane		Décane		Iso-octane	
	29 espèces		91 espèces		857 espèces	
	141 réactions réversibles		991 réactions irréversibles		3598 réactions réversibles	
Coef. de diffusion	11.86	(33.9%)	128.44	(60.9%)	20800.41	(96.7%)
Var. thermo. ($T, c_v, \dots$)	4.24	(12.1%)	20.72	(9.8%)	234.80	(1.1%)
Gradients	1.51	(4.3%)	2.48	(1.2%)	20.88	(0.1%)
Flux convectifs	0.63	(1.8%)	1.18	(0.6%)	8.86	(0.0%)
Flux diffusifs	0.89	(2.5%)	2.64	(1.3%)	19.34	(0.1%)
Termes source	14.19	(40.6%)	52.06	(24.7%)	382.26	(1.8%)
Autres	1.65	(4.7%)	3.32	(1.6%)	44.61	(0.2%)
Total	34.97		210.84		21511.16	

Tableau 3.15 – Répartition du temps de calcul sur une itération du solveur de chimie détaillée non-optimisé, exprimée avec l’efficacité réduite RE en μs . Le pourcentage du temps total est indiqué entre parenthèses. Les tests ont été effectués sur des flammes 1D, sur la station de travail avec le compilateur GNU.

des constantes de vitesses, qui évolue linéairement avec le nombre de réactions chimiques. Le calcul de la viscosité μ (Eq. (2.37)) est également extrêmement coûteux, puisqu’il nécessite l’évaluation des N_{sp} coefficients μ_k (Eq. (3.47a)), faisant intervenir la fonction exponentielle, et des N_{sp}^2 coefficients ϕ_{jk} (Eq. (2.38)), faisant intervenir des divisions et la fonction racine carrée.

Enfin, le calcul des variables thermodynamiques T, c_p, c_v et $h_{s,k}$, repose sur des opérations arithmétiques simples (additions et multiplications). Le nombre d’opérations est de plus proportionnel à N_{sp} . Dans SiTCom-B, une fonctionnalité du langage Fortran 90, les structures, ou *types*, est utilisée. Les structures permettent de grouper les données pour faciliter la modularité et la lisibilité du code. Le tableau 3.16 montre deux exemples de structures utilisées dans SiTCom-B. La première est la structure “species”, qui regroupe les données relatives aux espèces du mécanisme cinétique (nom, identifiant, masse molaire, données thermodynamiques, etc). La seconde est la structure “data”, contenant les données relatives aux grandeurs stockées sur le maillage. Les structures permettent notamment de mettre en place des “listes chaînées”. Chaque instance d’une structure contient un pointeur vers l’instance suivante (appelée “next”). Par exemple, la liste des espèces est utilisée dans une boucle pour calculer c_v dans chaque cellule du maillage (Tab. 3.17(a)). Bien que pratiques pour classer les données, ces listes chaînées entraînent un surcoût important lorsqu’elles sont utilisées intensivement (*i.e.* dans chaque cellule du maillage), lié aux calculs des adresses des pointeurs en mémoire. Notons que des listes chaînées sont également utilisées au cours du calcul des coefficients de diffusion et des constantes de vitesse des réactions chimiques.

3.4.4.2 Optimisation du calcul des variables thermodynamiques et des constantes de vitesse des réactions chimiques

L’analyse des performances du code a montré qu’environ 90% du temps de calcul étaient utilisés pour exécuter seulement 3 parties, à savoir le calcul des propriétés de transport (μ, λ, D_k), le calcul des variables thermodynamiques ($T, c_v, c_p, h_{s,k}$) et le calcul des constantes de vitesse k_f et k_b des réactions chimiques. Le coût de calcul important de ces éléments du code a été imputé à l’usage de fonctions coûteuses (exponentielles, puissances, racines carrées) et de listes chaînées de structures. Ces

<pre> type species_t character :: name integer :: id type(thermo_t), pointer :: thermo : type(species_t), pointer :: next end type species_t </pre>	<pre> type data_t integer :: Ndata logical :: dump type(r3), pointer :: rscalar : type(data_t), pointer :: next end type data_t </pre>
---	--

Tableau 3.16 – Stockage des données sous forme de listes chaînées de structures (*type*). Deux exemples sont donnés pour les structures *species* et *data*.

<pre> do iz=1,Nz do iy=1,Ny do ix=1,Nx i=floor(T/dT)+1 Cv=0.0 this_species=>species_list do while(associated(this_species)) k = this_species%id Yk = Y(k) Cvk = this_species%thermo%Cv(i) Cv = Cv+Yk*Cvk this_species=>this_species%next end do end do end do end do </pre>	<pre> do iz=1,Nz do iy=1,Ny do ix=1,Nx i=floor(T/dT)+1 Cv=0.0 do k=1,Nsp Yk = Y(k) Cvk = Cv_array(k,i) Cv = Cv+Yk*Cvk end do end do end do end do </pre>
(a) Version non-optimisée	(b) Version optimisée : la liste chaînée “species_list” de pointeurs contenant les propriétés thermodynamiques des espèces est remplacée par le tableau “Cv_array”

Tableau 3.17 – Optimisation d’une routine utilisée pour calculer la capacité calorifique c_v du mélange. Les indices ix , iy et iz servent à indexer les cellules du maillage. Nx , Ny et Nz sont les nombres de cellules contenues dans le maillage dans les directions x , y et z , respectivement.

deux points ont donc été améliorés dans le code.

Les listes chaînées peuvent facilement être remplacées par des tableaux dont les éléments sont contigus en mémoire, permettant ainsi d'améliorer la vitesse des accès à la mémoire. Le tableau 3.17 montre comment la routine qui permet de calculer c_v a été optimisée en remplaçant la liste chaînée des espèces par un tableau `Cv_array`. Cette opération a permis de réduire le temps d'exécution des routines calculant les variables thermodynamiques d'un facteur 3 à 4 (Tab. 3.18).

Pour réduire le temps de calcul lié au calcul des fonctions mathématiques coûteuses, plusieurs solutions peuvent être envisagées. La plus simple et la plus immédiate est d'utiliser une version simple précision de ces fonctions au lieu de leur version en double précision pour améliorer la vectorisation du code, et diviser ainsi par deux environ le temps requis pour les calculer. Le temps de calcul global resterait toutefois élevé, et une réduction de la précision n'est pas souhaitable.

Lu et Law [138] exposent plusieurs méthodes pour accélérer le temps de calcul des constantes de vitesse des réactions chimiques. Ils proposent notamment d'évaluer k_f en adoptant différentes expressions, en se basant sur le fait qu'une partie des constantes β et des températures d'activation T_a , utilisées dans la loi d'Arrhenius, sont nulles :

$$k_f = \begin{cases} A & \text{si } \beta = 0 \text{ et } T_a = 0 \\ \exp(\log(A) + \beta \log(T)) & \text{si } \beta \neq 0 \text{ et } T_a = 0 \\ \exp(\log(A) - T_a/T) & \text{si } \beta = 0 \text{ et } T_a \neq 0 \\ \exp(\log(A) + \beta \log(T) - T_a/T) & \text{si } \beta \neq 0 \text{ et } T_a \neq 0 \end{cases} \quad (3.88)$$

Le gain sur le temps de calcul est donc proportionnel au nombre de réactions chimiques pour lesquelles $\beta = 0$ et $T_a = 0$, tous les autres cas de figure nécessitant au moins l'évaluation d'une fonction exponentielle. Cette proportion est d'environ 40% pour le mécanisme de Lindstedt, 20% pour le mécanisme de Luche et seulement 7% pour le mécanisme de l'iso-octane. Ce type d'optimisation est donc insuffisant pour améliorer significativement l'efficacité du calcul des taux de réaction.

Pour le calcul des grandeurs faisant intervenir des fonctions exponentielles, Lu et Law suggèrent de tabuler partiellement ces dernières, en utilisant leurs propriétés de calcul :

$$\begin{aligned} \exp(x) &= \exp(\bar{x} + \varepsilon) = \exp(\bar{x}) + \exp(\varepsilon), \\ \text{avec } \varepsilon &= x - \bar{x} \text{ et } \exp(\varepsilon) = 1 + \varepsilon \left(1 + \frac{1}{2}\varepsilon \left(1 + \frac{1}{3}\varepsilon(1 + \dots) \right) \right) \end{aligned} \quad (3.89)$$

La valeur de $\exp(\bar{x})$ est alors lue dans une table, calculée une seule fois au début de la simulation, et seule la quantité $\exp(\varepsilon)$ est calculée au cours de la simulation, à l'aide de séries de Taylor. L'appel coûteux à la fonction exponentielle est ainsi remplacé par un accès à la mémoire et quelques multiplications.

Enfin, Lu et Law proposent de stocker en mémoire la valeur du taux de réaction de chaque réaction, pour réutiliser cette valeur à la prochaine itération si la température est restée inchangée. Une approche comparable a été mise en application dans SiTCom-B, visant à fournir des gains de performances plus conséquent que les méthodes qui viennent d'être présentées. Le principe est de calculer une seule fois au début de la simulation les taux de réaction de chaque réaction, qui dépendent uniquement de la température, pour plusieurs valeurs de température réparties uniformément sur un intervalle assez large pour couvrir toutes les valeurs qui seront rencontrées pendant la simulation. Les taux de réaction sont ensuite interpolés linéairement entre les deux points de la table les plus proches au cours de la simulation, au lieu d'être calculés. La même approche est utilisée pour calculer μ_k , λ_k , ϕ_{jk} et D_{jk} .

Deux points doivent toutefois être traités avec précaution lors de la mise en place d'une telle

approche. Le premier est la présence de fortes valeurs de la dérivée par rapport à la température, qui doivent être correctement captées par la table, et le second est le volume de données à stocker dans la table, qui doit être acceptable vis-à-vis de la quantité de mémoire disponible. Pour remplir ces deux conditions, un compromis sur la valeur de l'écart ΔT entre deux points de la table doit être trouvé.

L'évolution des coefficients de transport en fonction de la température pour toutes les espèces du mécanisme de Lindstedt est montrée sur la figure 3.20. Les valeurs ont été réduites par leur maximum sur l'intervalle de température affiché. L'intervalle de température choisi pour la tabulation ($[200, 3000]$ K) contient les températures minimales et maximales rencontrées pendant les simulations, à savoir 300 K pour les gaz frais et environ 2200 K pour les gaz brûlés. Les coefficients μ_k , λ_k et D_{jk} augmentent de façon quasi-linéaire avec la température, tandis que les coefficients ϕ_{jk} ont une allure qui dépend des valeurs de μ_j et μ_k . Dans tous les cas, les pentes des courbes restent modérées, et une valeur $\Delta T_{transp} = 5$ K semble suffisante pour stocker ces grandeurs avec une précision suffisante. La comparaison des résultats obtenus avec la version non-optimisée du code avec les résultats obtenus en calculant les coefficients de transport et les constantes de vitesse avec cette procédure ne montre aucune différence visible.

La quantité de mémoire M_{transp} réservée pour la tabulation en double précision (nombres réels codés sur 8 octets) des coefficients de transport est calculée ainsi :

$$M_{transp} = 8 \times \frac{T_{max} - T_{min}}{\Delta T_{transp}} \times (2N_{sp} + 2N_{sp}^2) \quad (3.90)$$

où $T_{min} = 200$ K et $T_{max} = 3000$ K sont les bornes de l'intervalle de température utilisé pour construire la table. La table contient les évolutions en température pour les N_{sp} valeurs de μ_k et λ_k , et pour les N_{sp}^2 valeurs de D_{jk} et ϕ_{jk} . Pour le schéma de Luche à 91 espèces, un pas de température $\Delta T_{transp} = 5$ K conduit à une valeur $M_{transp} = 75$ Mo, tout à fait acceptable pour n'importe quelle machine de calcul. Dans la suite de ce manuscrit, les solveurs de chimie détaillée et HTTC effectuent le calcul des coefficients de transport avec cette approche, avec $\Delta T_{transp} = 5$ K.

Pour les gros mécanismes, la quantité de mémoire requise peut devenir un obstacle à l'utilisation de cette méthode de tabulation. Pour le schéma de l'iso-octane à 857 espèces, la dépendance quadratique de M_{transp} au nombre d'espèces conduirait à une valeur de $M_{transp} = 6.6$ Go avec $\Delta T_{transp} = 5$ K, ce qui serait beaucoup trop important pour un code parallélisé uniquement avec MPI, comme c'est le cas pour SiTCom-B. Les faibles valeurs de la dérivées par rapport à la température autoriseraient toutefois une augmentation de ΔT_{transp} , pour obtenir une valeur de M_{transp} raisonnable.

Dans les cas des constantes de vitesses, la dépendance avec la température, régie par la loi d'Arrhenius, est plus complexe puisqu'elle dépend des valeurs des coefficients A , β et T_a . Les différentes formes de courbes pour k_f et k_r observées avec le mécanisme de Lindstedt sont affichées sur les figures 3.21, 3.22 et 3.23. Pour certaines réactions, une valeur élevée de la constante d'équilibre K_c conduit à des fortes valeurs de dérivée (Fig 3.23) pour des valeurs de température faibles. Notons que ces valeurs de température ne sont pas rencontrées dans les simulations présentées par la suite, et que les espèces chimiques impliquées dans ces réactions sont généralement absentes sur ces plages de températures. Afin de capter ces forts gradients, un écart ΔT_{chem} inférieur à ΔT_{transp} a toutefois été choisi. Dans la suite de ce manuscrit, les solveurs de chimie détaillée et HTTC effectuent le calcul des constantes de vitesse avec cette approche, avec $\Delta T_{chem} = 1$ K. Notons que contrairement au cas des coefficients de diffusion, la mémoire M_{chem} nécessaire au stockage des constantes de vitesse reste acceptable, malgré les valeurs plus faibles de ΔT_{chem} , quelque soit le mécanisme réactionnel considéré. La valeur de M_{chem} est calculée comme suit :

$$M_{chem} = 8 \times \frac{T_{max} - T_{min}}{\Delta T_{chem}} \times 2N_r \quad (3.91)$$

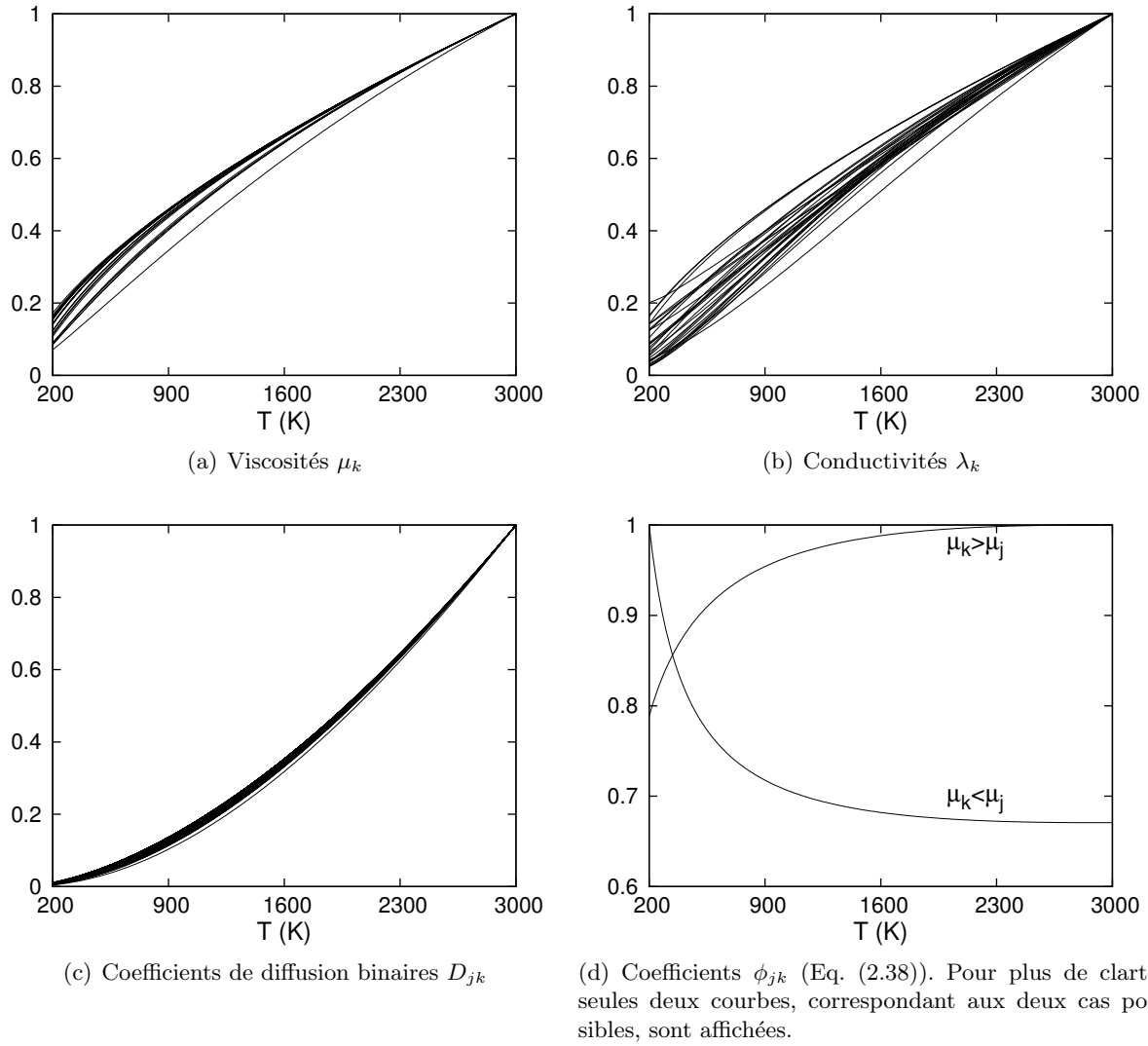


Figure 3.20 – Coefficients de diffusion individuels de toutes les espèces du mécanisme de Lindstedt, en fonction de la température. Pour chaque espèce, les grandeurs affichées ont été adimensionnées par leur maximum sur l'intervalle de température [200, 3000] K.

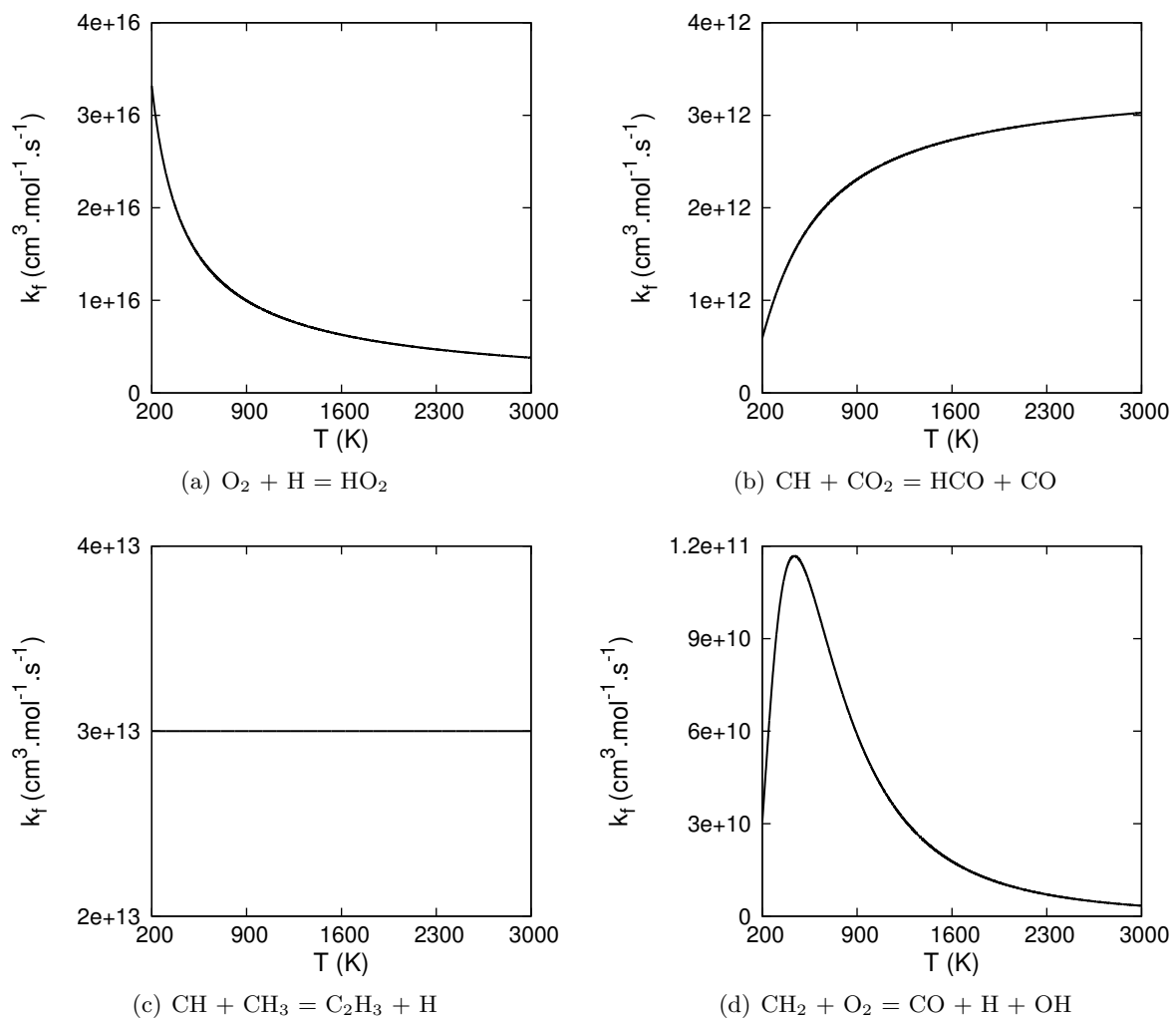


Figure 3.21 – Constantes de vitesse k_f (sens direct) de réactions élémentaires extraites du mécanisme de Lindstedt, en fonction de la température.

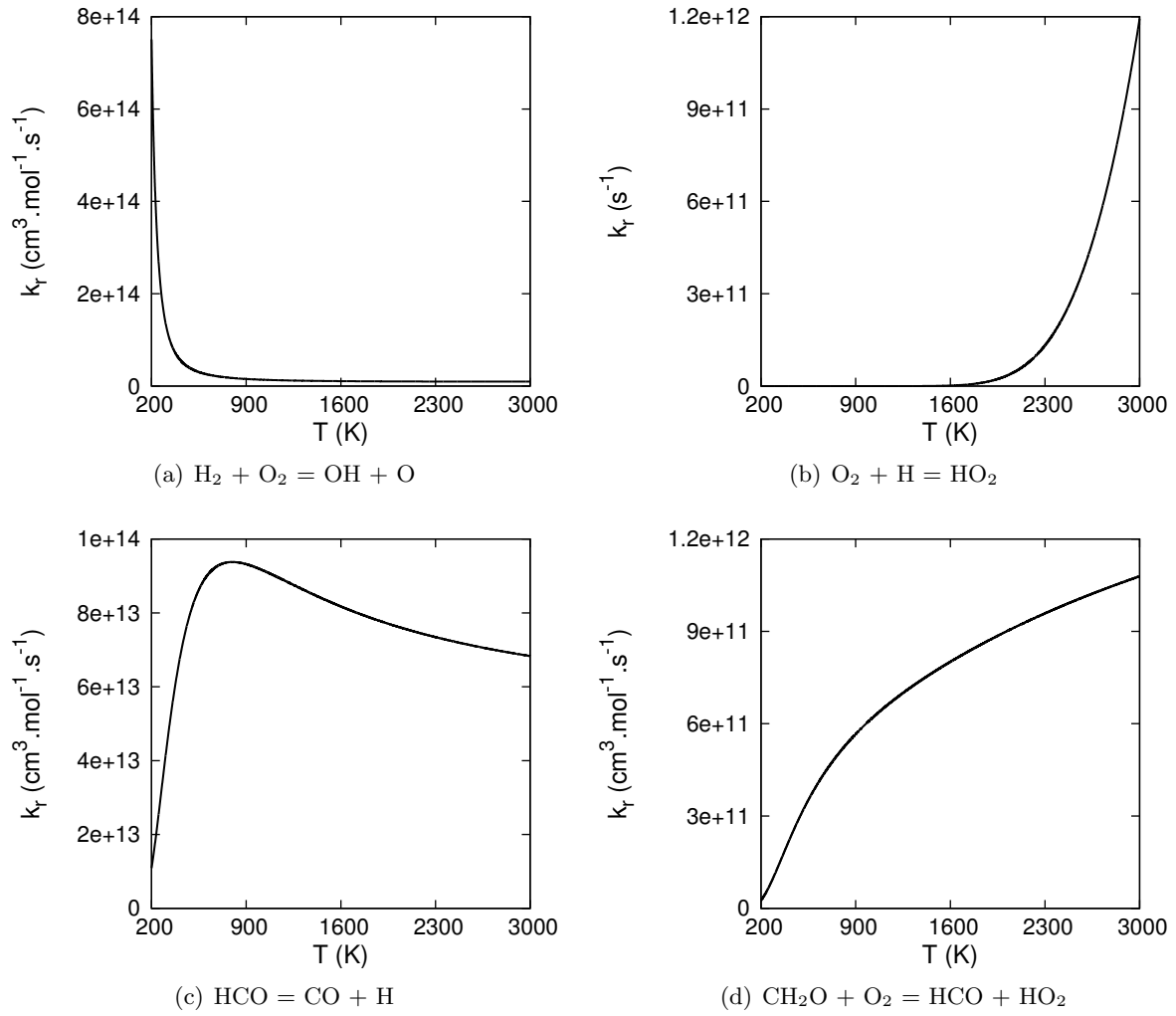


Figure 3.22 – Constantes de vitesse k_r (sens inverse) de réactions élémentaires extraites du mécanisme de Lindstedt, en fonction de la température.

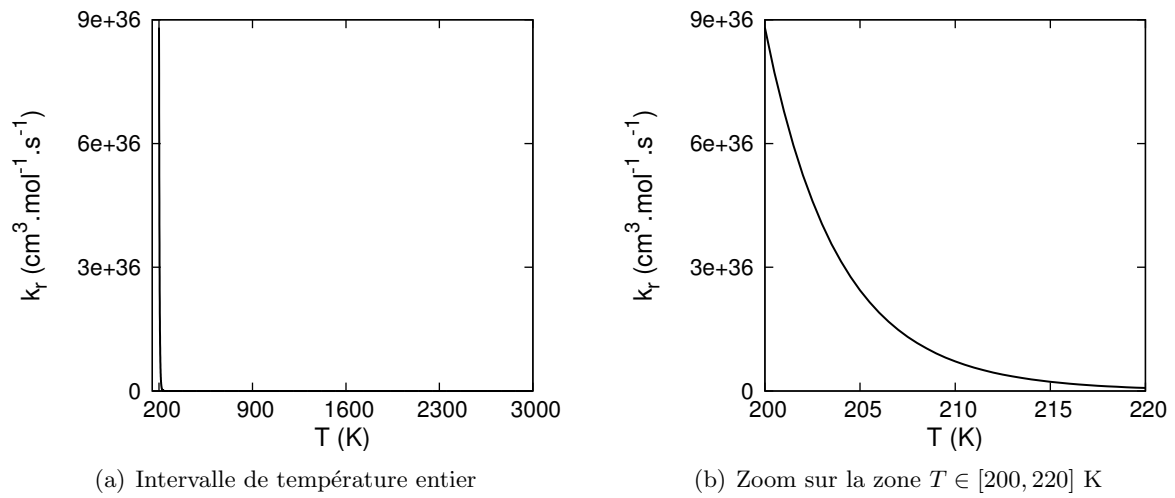


Figure 3.23 – Constantes de vitesse k_r (sens inverse) de la réaction élémentaire $\text{CH}_2 = \text{C} + \text{H}_2$, extraite du mécanisme de Lindstedt, en fonction de la température.

Tâche	Mécanisme					
	Méthane		Décane		Iso-octane	
	29 espèces		91 espèces		857 espèces	
	141 réactions réversibles		991 réactions irréversibles		3598 réactions réversibles	
Calcul des coefficients de diffusion						
Non-optimisé	11.86	(33.9%)	128.44	(60.9%)	20800.41	(96.7%)
Optimisé	0.81	(8.8%)	4.60	(16.6%)	302.02	(61.2%)
Rapport non-opt./opt.	14.64		27.92		68.87	
Calcul des variables thermodynamiques (T , c_v , ...)						
Non-optimisé	4.24	(12.1%)	20.72	(9.8%)	234.80	(1.1%)
Optimisé	1.45	(15.9%)	4.64	(16.7%)	52.22	(10.6%)
Rapport non-opt./opt.	2.92		4.47		4.50	
Calcul des termes source						
Non-optimisé	14.19	(40.6%)	52.06	(24.7%)	382.26	(1.8%)
Optimisé	2.19	(23.8%)	8.85	(32.0%)	45.40	(9.2%)
Rapport non-opt./opt.	6.48		5.88		8.42	
Total						
Non-optimisé	34.97		210.64		21511.16	
Optimisé	9.13		27.71		493.33	
Rapport non-opt./opt.	3.83		7.60		43.60	

Tableau 3.18 – Répartition du temps de calcul sur une itération du solveur de chimie détaillée, exprimée avec l’efficacité réduite RE en μ s. Le pourcentage du temps total est indiqué entre parenthèses.

Pour le mécanisme de l’iso-octane, avec $\Delta T_{chem} = 1$ K, on obtient $M_{chem} = 161$ Mo, ce qui est faible en comparaison de la mémoire habituellement allouée au maillage.

Combinée au remplacement des listes chaînées de pointeurs, permettant des accès plus rapides à la mémoire, la tabulation des coefficients de transport et des constantes de vitesses en fonction de la température permet des gain de performances extrêmement importants. Le calcul des constantes de vitesse est 6 à 8 fois plus rapide, tandis que le temps de calcul des coefficients de transport, qui dépend quadratiquement du nombre d’espèces, est réduit d’un facteur variant de 14 à 68 (Tab. 3.18). Les optimisations qui ont été présentées dans cette section permettent une réduction importante du temps de calcul global, d’un facteur 4 pour le mécanisme de Lindstedt pour le méthane, 7 pour le mécanisme de Luche pour le kérosène, et 43 pour le mécanisme pour l’iso-octane.

3.4.4.3 Optimisations liées au choix du compilateur

Au cours de cette thèse, deux compilateurs ont principalement été utilisés :

- le compilateur GNU gfortran, facilement accessible, car *open-source* et directement intégré à Linux.
- le compilateur commercial d’Intel, ifort, présent sur tous les super-calculateurs.

Les performances du code optimisé (code contenant les optimisations présentées dans le paragraphe précédent) et non-optimisé (code initial) ont été évaluées sur la machine locale avec les deux compilateurs, lors de calculs sur un seul processeur, sur des flammes 1D (Tab. 3.19). Pour la version

Compilateur	Mécanisme		
	Méthane	Décane	Iso-octane
<i>Code non-optimisé</i>			
Intel	43.71	227.29	20251.13
GNU	34.97	210.64	21511.16
Rapport Intel/GNU	1.25	1.08	0.94
<i>Code optimisé</i>			
Intel	18.89	52.62	616.12
GNU	9.13	27.71	493.33
Rapport Intel/GNU	2.07	1.90	1.25

Tableau 3.19 – Performances du solveur de chimie détaillée (RE en μs), compilé avec les compilateurs GNU et Intel.

non-optimisée de SiTCom-B, les deux compilateurs offrent des performances comparables. Toutefois, dans le cas de la version optimisée, le compilateur GNU conduit à des temps de calcul deux fois moins élevés que ceux du compilateur d’Intel pour le cas du méthane. Cet écart tend à se réduire lorsque le nombre d’espèces du schéma cinétique augmente. Notons que le compilateur Intel devrait conduire à des performances au moins égales à celle du compilateur GNU, voire supérieures, puisqu’il est conçu pour générer des codes optimisés pour les processeurs Intel.

Afin de détecter la cause des mauvaises performances du compilateur Intel, le temps de calcul individuel de chaque routine du code a été mesuré avec l’outil Valgrind (valgrind.org). Cette analyse a mis en cause un certain nombre de routines, faisant apparaître des boucles qui mettent en jeu des inclusion de structures comme montré dans le tableau 3.20(a). De telles structures semblent nécessiter des calculs d’adresses en mémoire, coûteux lorsqu’ils sont effectués dans une boucle sur les cellules du maillage, et mal gérés par le compilateur Intel.

La solution retenue est de créer un pointeur avant la boucle, désignant le dernier élément (*val*) de la suite de structures (Tab. 3.20(b)). Ce type d’optimisation semble être automatiquement prise en charge par le compilateur GNU. Après application de cette modification, des performances similaires ont été retrouvées avec les deux compilateurs.

3.4.4.4 Analyse des performances parallèles

Les performances parallèles (*scalability*) de la version optimisée du solveur de chimie détaillée de SiTCom-B ont été évaluées lors de tests dit de “*weak scaling*”. Un calcul d’un écoulement uniforme dans un domaine 3D périodique est calculé pendant 500 itérations, en utilisant le mécanisme de Lindstedt. Notons que la résolution des équations étant entièrement explicite, le temps réduit RE nécessaire à l’exécution d’une itération dépend uniquement du mécanisme cinétique considéré et des caractéristiques matérielles (fréquences d’horloge, temps de latence, débit des transferts de donnée, etc) de l’ordinateur utilisé. La nature de l’écoulement choisi n’a donc ici pas d’importance.

Le calcul est effectué pour un nombre de cœurs croissant, le nombre de cellules par cœur restant égal à 25^3 . Le temps de calcul réduit RE est comparé à la valeur de RE sur 1 seul cœur, permettant d’évaluer la dégradation des performances avec l’augmentation du nombre de cœurs (Fig. 3.24). Les tests ont été effectués sur la machine Occigen du CINES avec le compilateur GNU gfortran, pour un nombre de cœurs variant de 1 à 8192, sur la machine Antares du CRIANN entre 1 et 32 cœurs, et sur la machine locale entre 1 et 8 cœurs. Sur Occigen, les performances du code compilé avec ifort d’Intel ont également été évaluées sur 1 et 1024 cœurs.

<pre> do iz=1,Nz do iy=1,Ny do ix=1,Nx data_out%rscalar%val(ix,iy,iz) = data_in1%rscalar%val(ix,iy,iz) + data_in2%rscalar%val(ix,iy,iz) end do end do end do </pre>	<pre> val_out=>data_out%rscalar%val val_in1=>data_in1%rscalar%val val_in2=>data_in2%rscalar%val do iz=1,Nz do iy=1,Ny do ix=1,Nx val_out(ix,iy,iz) = val_in1(ix,iy,iz) + val_in2(ix,iy,iz) end do end do end do </pre>
(a) Version non-optimisée	(b) Version optimisée : des pointeurs vers les tableaux “val” sont placés avant d’entrer dans les boucles.

Tableau 3.20 – Optimisation d’une routine utilisée pour additionner deux grandeurs sur l’ensemble du domaine, pour améliorer le temps de calcul avec le compilateur Fortran d’Intel.

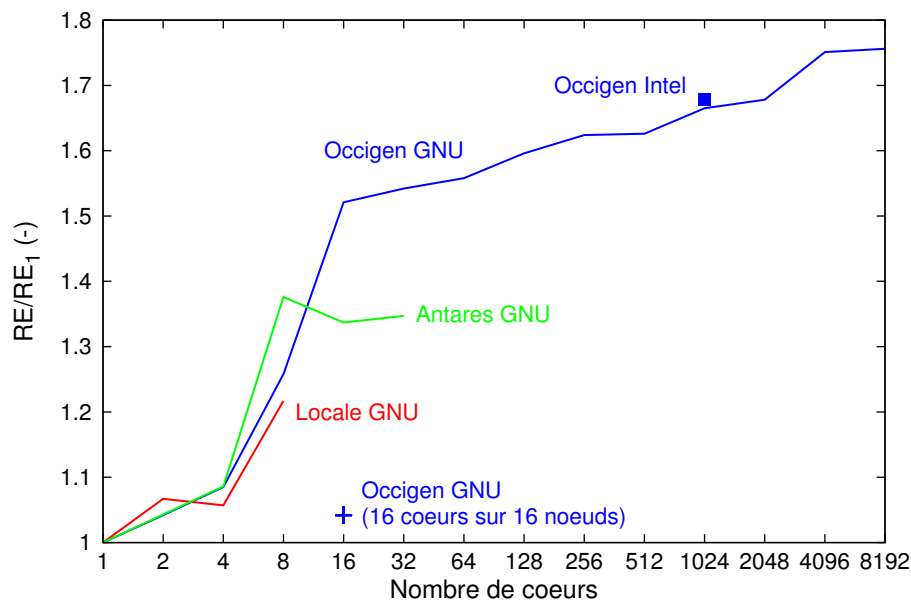


Figure 3.24 – Test de performances (*weak scaling*) sur les machines Occigen du CINES, Antares du CRIANN et la machine locale. Chaque processeur contient un bloc de 25^3 cellules.

Une dégradation importante de RE est observée sur Antares et sur la machine locale entre 1 et 8 cœurs. Sur Occigen, une forte dégradation d'environ 50% est également observée entre 1 et 16 cœurs, la pente de la courbe diminue ensuite et reste à peu près constante entre 16 et 8192 cœurs. Afin d'expliquer cette dégradation, le temps alloué à l'exécution des parties principales du code sur 1 seul cœur a été analysé, et comparé au temps sur 16 cœurs (Tab. 3.21).

Dans les conditions du test de *scaling* (niveau d'optimisation du compilateur O3 et 16 cœurs sur un seul noeud de calcul), le temps dédié à l'exécution des sous-programmes nécessitant des communications entre processeurs (globales entre tous les processeurs du domaine ou point-à-point entre deux processeurs) augmente, du fait de la surcharge de travail introduite par les échanges de données supplémentaires, mais il augmente également pour les zones où aucun échange n'est effectué. Un tel comportement est représentatif d'un code limité par les accès à la mémoire, et non par les opérations arithmétiques effectués par les cœurs de calcul. Lorsqu'une opération mathématique est exécutée, les données doivent être acheminées depuis la mémoire globale (RAM) du noeud vers les processeurs, où elles transitent via les différents niveaux de mémoire cache vers les cœurs de calcul (Fig. 3.25). Le résultat de cette opération doit ensuite parcourir le chemin inverse pour retourner dans la mémoire globale.

Le débit total de données entre les cœurs d'un noeud et sa mémoire globale est limité, cette dernière étant partagée par tous les processeurs du noeud, et les caches L2 et L3 d'un processeur étant partagés par tous les cœurs du processeur. Lorsque le nombre de cœurs utilisés dans un noeud augmente, le débit entre chaque cœur et la mémoire globale diminue. Ce phénomène est visible uniquement lorsque le nombre de noeuds utilisé est constant et le nombre de cœurs croissant. Il est par conséquent observé entre 1 et 16 cœurs sur Occigen (les noeuds comportant 24 cœurs). Entre 16 et 8192 cœurs, les noeuds sont occupés quasiment entièrement, et la dégradation de RE est entièrement provoquée par le coût des communications entre processeurs. Sur Antares, les noeuds étant constitués de 8 ou 12 cœurs, le changement de pente est observé à partir de 8 cœurs.

Pour confirmer la présence d'un tel phénomène, un calcul sur 16 cœurs, répartis sur 16 noeuds différents (*i.e.* un seul cœur utilisé par noeud), a été effectué (Tab. 3.21). Chaque cœur bénéficie alors de l'intégralité du débit de transfert de donnée avec la mémoire globale du noeud, et la dégradation de RE est engendrée uniquement par les échanges de données, et est alors bien plus faible que dans le cas des 16 cœurs sur un seul noeud (Fig. 3.24). Enfin, des calculs sur 1 cœur, puis sur 16 cœurs contenus dans un même noeud ont été effectués, en désactivant préalablement les optimisations automatiques du compilateur (niveau O0). La charge de calcul de chaque cœur est alors artificiellement augmentée, et les accès à la mémoire ne sont plus limitant, comme le prouvent les valeurs identiques de RE dans les zones du code ne nécessitant aucun échange entre cœurs, sauf pour le sous-programme de remise à zéro des variables, constitué uniquement de lectures et d'écritures dans la mémoire.

Ces deux derniers tests n'ont évidemment pour but que le diagnostic et l'explication de la dégradation des performances parallèles du code, et ne constituent en rien une solution viable. Certaines zones du codes pourraient être optimisées, notamment en supprimant les lectures/écritures en mémoire pouvant être évitées, afin de limiter le phénomène décrit plus haut et d'améliorer les performances parallèles du code.

Tâche	Type de communication MPI	1 noeud		16 noeuds
		O3	O0	O3
Calcul des gradients	Point à point	71.09	5.83	10.37
Calcul du pas de temps	Globale	58.25	30.01	14.79
Echange des variables transportées entre processeurs	Point à point	103.60	69.65	25.30
Calcul des variables thermodynamiques	-	41.03	0.89	-0.98
Calcul des propriétés de transport	-	1.49	-1.14	0.68
Calcul des flux convectifs	-	35.05	0.85	0.39
Calcul des flux diffusifs	-	63.02	1.02	0.31
Calcul des termes source	-	2.04	-0.36	-0.64
Remise à zero de variables	-	218.18	157.40	-0.45
Mise à jour des variables transportées	-	26.11	0.50	-1.03

Tableau 3.21 – Variation relative (en pourcentage) du temps de calcul lorsque le nombre de processeurs est augmenté de 1 à 16 pendant un test de “*weak scaling*” sur la machine Occigen du CINES. Le compilateur GNU gfortran a été utilisé. Le test a été effectué en utilisant 16 cœurs sur un même noeud avec deux niveaux d’optimisation du compilateur (O0 et O3), puis en répartissant les 16 cœurs sur 16 noeuds différents.

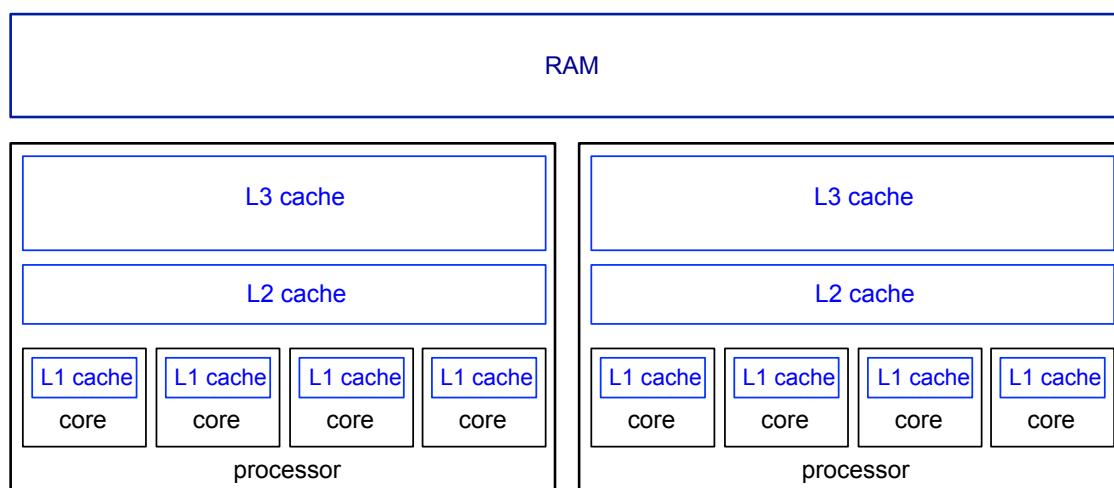


Figure 3.25 – Schéma de la répartition de la mémoire dans un noeud de calcul à 2 processeurs comprenant 4 cœurs chacun.

Hybrid Transported-Tabulated Chemistry

Contents

4.1	Description of the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry approach . .	106
4.1.1	Global principle	106
4.1.2	“Fast” formulation of the HTTC solver	108
4.1.3	Overview of the HTTC solver in SiTCom-B	111
4.2	Self-similarity in hydrocarbon flames	114
4.2.1	Radical species in methane flames	114
4.2.2	Kerosene flames	119
4.2.2.1	Multi-zone self-similarity	119
4.2.2.2	Species lumping	120
4.2.3	Self-similarity for very large kinetic mechanisms	123
4.2.4	The particular case of NOx	124
4.3	Table building	126
4.3.1	Flame database generation	127
4.3.1.1	Building procedure	127
4.3.1.2	Flame meshing	127
4.3.2	Choice of the tabulated species	128
4.3.2.1	Mathematical criteria	128
4.3.2.2	The particular case of NOx	129
4.3.3	Choice of the control parameters	130
4.3.4	Prolongation of the table out of the flammability limits	131
4.3.4.1	Computation of 1D flames outside the flammability limits	134
4.3.4.2	Extrapolation of the 1D premixed flames	136
4.3.5	Automated tool for the generation of tables	139
4.4	Simulation of one-dimensional methane and kerosene flames	144
4.4.1	Presentation of the study and numerical parameters	144
4.4.2	Computation of stoichiometric flames	145
4.4.2.1	Validation towards fully-detailed chemistry	145
4.4.2.2	Computation using tables built with a single flame	147
4.4.2.3	Computational efficiency	149
4.4.3	Self-similarity errors	154
4.4.4	Mass conservation	157
4.4.5	NOx computation with HTTC	162
4.5	Conclusion	163

This chapter focuses on the description, implementation and validation of the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry method (HTTC). First, the HTTC strategy is presented. Then, the self-similar properties of the chemical species involved in hydrocarbon flames, required to build up the HTTC table, are investigated. The generation of the HTTC table must be addressed with a special care since the precision of the calculation of the whole chemistry and the robustness of the solver strongly depend on

this table. This is the purpose of the third section. Finally, in a fourth section, methane and kerosene one-dimensional flames are computed, in order to validate the method against results from the fully-detailed chemistry solver, and to assess its computational efficiency. Details about corrections needed in the frame of DNS/LES codes are provided. At the end of this last section, the prediction of NO_x using HTTC is also investigated.

4.1 Description of the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry approach

4.1.1 Global principle

In order to simulate a reactive flow with a detailed chemistry solver in a DNS/LES code, transport equations are solved for energy, momentum, and mass fractions of the chemical species. For the latter, this requires the computation of many source terms, thermodynamical quantities and transport coefficients using the full set of species contained in the kinetic mechanism. As shown before in this manuscript, solving for the mass fraction of the species leads to two main difficulties :

1. the high number of operations required to compute all these variables for every species,
2. the stiffness of the chemical system.

Implicit numerical schemes can be used to overcome this stiffness, and increase the stability limit of the timestep. However, those numerical schemes do not solve the issue raised by the first point, and the computational cost of such numerical schemes does not scale linearly with the number of species [138, 149, 165, 166], and may become very high for large chemical mechanisms. Reduced kinetics feature smaller numbers of species and may be a solution to the two difficulties presented above, but with a lack of precision.

Therefore, a method able to take all the species of a full kinetic mechanism into account during a simulation, with a computational cost compatible with today's computer capabilities, has been proposed by Ribert *et al.* [188]. It is called "Hybrid Transported-Tabulated Chemistry" (HTTC). With HTTC, the full set of species is split into two parts : the main species, with the largest mass fractions in the flow, and the remaining minor species. The mass fractions of the main species are computed by solving a transport equation (Eq. (2.43)), using a detailed chemistry solver, as presented in section 3.4.2. Instead of being transported, the minor species are read in a table. The classic momentum and energy transport equations are still solved. The basis of HTTC is to keep the full set of species during the chemistry computation, or in other words, to compute the source terms with all the species.

The radical species are involved in chemical reactions that mostly take place in the flame front and which are responsible for the stiffness of the chemical system. Consequently, removing them from this system by reading their values in a table, instead of solving for them, makes it easier to solve. In the frame of explicit solvers, the chemical time step is then expected to be largely increased without any stability issue, thanks to the tabulation of the minor species. In the case of kinetic mechanisms for heavy fuels, the chemical time step is usually far below the convective time step, which leads to prohibitive computation costs. For such fuels, it could be increased by several orders of magnitude, to become larger than the convective time step when using HTTC, and thus allowing the global time step of the simulation to be increased. Simulations of reactive flows with very large detailed mechanisms using fully explicit numerical schemes could then be considered, whereas they are totally out of reach with classic detailed chemistry solvers.

The following notations are introduced :

- The subscript M (for “Major”) will refer to the transported species, and the subscript m (for “minor”) will refer to the tabulated species.
- The total number of transported and tabulated species are denoted N_M and N_m , respectively. As a reminder, the total number of species present in the detailed kinetic mechanism is denoted N_{sp} , and the total number of chemical reactions is N_r . We have $N_{\text{sp}} = N_M + N_m$.
- The letters M and m will also be used to refer to the set of indices of the transported and tabulated species, respectively. Then, $M = \{k \mid \text{species } k \text{ is transported}\}$, $m = \{k \mid \text{species } k \text{ is tabulated}\}$, and $m \cup M = [1, N_{\text{sp}}]$.
- The mass fraction of any species k is still denoted Y_k . The full vector of species is denoted Y . Then, $Y = (Y_1, \dots, Y_{N_{\text{sp}}})$. The vector Y_M and Y_m are built with the mass fractions of the transported and tabulated species, respectively. We have $Y_M = (Y_k \mid k \in M)$ and $Y_m = (Y_k \mid k \in m)$.
- From now on, the term “fully transported chemistry” (shortened by the acronym “FTC”) will be used to mention the transported chemistry method as described in section 3.4.2, and by extension, to mention the transported chemistry solver and all the results obtained with this solver.

The table is built upon a library of one-dimensional premixed laminar flames, computed from lean to rich conditions. The mass fractions of tabulated species are stored versus a progress variable Y_c , and a mixture fraction in fresh gases Z_u (or identically an equivalence ratio ϕ), that are the classic variables (the “control parameters”) used to parameterize chemical tables. A difference with the classic tabulation methods, though, is that those two variables are not transported but built locally from a linear combination of the species mass fractions :

$$Y_c(x) = \sum_{k \in M} \alpha_k Y_k(x) \quad (4.1)$$

$$Z_u = \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \beta_k Y_{k,u} \quad (4.2)$$

where x represents the physical space, and $Y_{k,u}$ is the mass fraction of species k in the unburnt mixture. In that way, the diffusion of those variables is naturally taken into account, and models to compute approximated diffusion coefficients are not needed. In practice, the mixture fractions are calculated using the Bilger’s formula (Eq. (2.11)). For the progress variable, $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ is used in this chapter, unless another definition is specified.

The pressure P_u and the temperature T_u in fresh gases can also be added as table control parameters, so that the tabulated species mass fractions are parameterized by a progress variable plus a set of quantities in the fresh gases, and are thus given by $Y_k = Y_k(Y_c, Z_u, P_u, T_u)$, with $Z_u \in [Z_L, Z_R]$, $P_u \in [P_{\min}, P_{\max}]$ and $T_u \in [T_{\min}, T_{\max}]$. A shorter notation is introduced : a set of conditions in the fresh gases is denoted $S = (Z_u, P_u, T_u)$, with $S \in \Omega_S$, where $\Omega_S = [Z_L, Z_R] \times [P_{\min}, P_{\max}] \times [T_{\min}, T_{\max}]$ is the boundary of the table. To get a generic table that can be used in a wide range of pressure, equivalence ratio and temperature conditions, this boundary should be as large as possible, as soon as the validity limits of the kinetic mechanism used to generate the flame library are not exceeded. In its raw form, the table consists in a set of N_m four-dimensional arrays $Y_k = Y_k(Y_c, Z_u, P_u, T_u)$, $k \in m$. As it was mentioned in the introduction chapter, the storage of such tables would lead to very large files, not easy to handle on massively parallel architectures.

The concept of self-similarity is used in the HTTC method in order to reduce the size of the table. It is introduced here, and will be described with more details in section 4.2, where it is applied to several different chemical mechanisms. Several studies [186, 231, 189, 188] have shown that, in

hydrocarbon flames, the response of radical species mass fractions is similar for various values of fresh gas temperature, pressure and equivalence ratio, in several canonical flame types. In other words, the shapes of the profiles $Y_k(Y_c)$, $k \in m$ are very similar for every set of conditions S in Ω_S . As an example, Fig. 4.2(a) shows the mass fraction of radical HCCO for several sets S . The maximum value and the width in the Y_c space is different for each S , but every profiles increase from zero to their maximum value and decrease to go back to zero in the burnt gases. Then, by applying the proper mathematical transformation to those profiles, they are likely to be superimposed and gathered as a unique curve. This transformation is now described.

First, a reduced mass fraction Y_k^+ is computed by dividing the mass fraction Y_k by its maximum (Fig. 4.1(a)) :

$$Y_k^+(Y_c, S) = \frac{Y_k(Y_c)}{Y_k^{\max}(S)} \quad (4.3)$$

with

$$Y_k^{\max}(S) = \max_{Y_c \in [0, Y_{c,eq}]} Y_k(Y_c, S) \quad (4.4)$$

A reduced progress variable $Y_{c,k}^+$ is then defined for every tabulated species and for all $S \in \Omega_S$ (Fig. 4.1(b) and Fig. 4.1(c)) :

$$Y_{c,k}^+(S) = \frac{Y_c - Y_{c,k}^A(S)}{Y_{c,k}^B(S) - Y_{c,k}^A(S)} \quad (4.5)$$

where $Y_{c,k}^A(S)$ and $Y_{c,k}^B(S)$ are the two values of the progress variable when Y_k reaches half the value of its maximum. Mathematically, it reads :

$$Y_k^+(Y_c, S) = 0.5 \Leftrightarrow Y_c = Y_{c,k}^A(S) \text{ or } Y_c = Y_{c,k}^B(S) \quad (4.6)$$

As an outcome, all the reduced profiles $Y_k^+(Y_{c,k}^+)$ are now superimposed on one unique profile (Fig. 4.2(b)). This property is called “self-similarity” and can be observed for almost all the radical species $k \in m$ in hydrocarbon flames. A self-similar version of the table is formed by gathering the N_m vectors $Y_k^+(Y_{c,k}^+)$ (the “reduced profiles”), plus the parameters used to reduced the profiles, $Y_k^{\max}(S)$, $Y_{c,k}^A(S)$ and $Y_{c,k}^B(S)$ (the “reduction parameters”). For each tabulated species, 1 one-dimensional vector plus 3 three-dimensionnal arrays are thus stored, instead of 1 four-dimensional array for the “raw” table. In usual chemical tables, the Y_c direction is discretized using around 100 points [47, 179]. Consequently, uncoupling Y_c from the rest of the self-similar table leads to tables approximately 100 times lighter than usual tables. As an exemple, loading in memory a table with 70 tabulated species mass fractions in double precision¹, parametrized using 100 values of Y_c , 100 values of Z_u , 20 values of T_u and P_u , would require $70 \times 100 \times 100 \times 20 \times 20 \times 8 = 2.24 \times 10^9$ bytes ≈ 2 GB in its raw form, which is close to the available quantity of memory on most supercomputers. Conversely, the memory requirement of the self-similar form is only 20 MB, which is negligible when compared with the available memory.

The whole building process of the table is presented in section 4.3, where more detailed explanations about the choice of the tabulated species and the choice of the species used to build the progress variable are also provided.

4.1.2 “Fast” formulation of the HTTC solver

A considerable amount of computational time is saved with HTTC, by increasing the global time step allowed in fully explicit detailed chemistry solvers. As a consequence, less iterations are required

1. In double precision, a real number is usually encoded on 8 bytes.

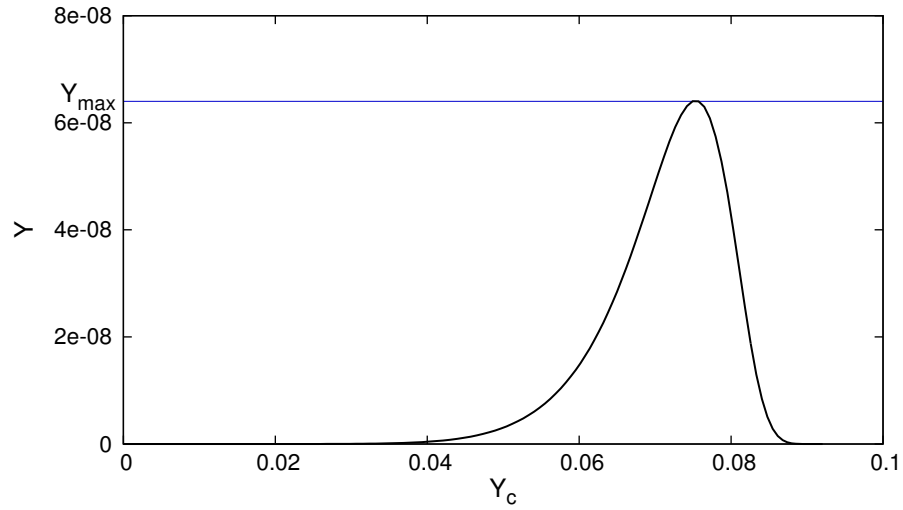
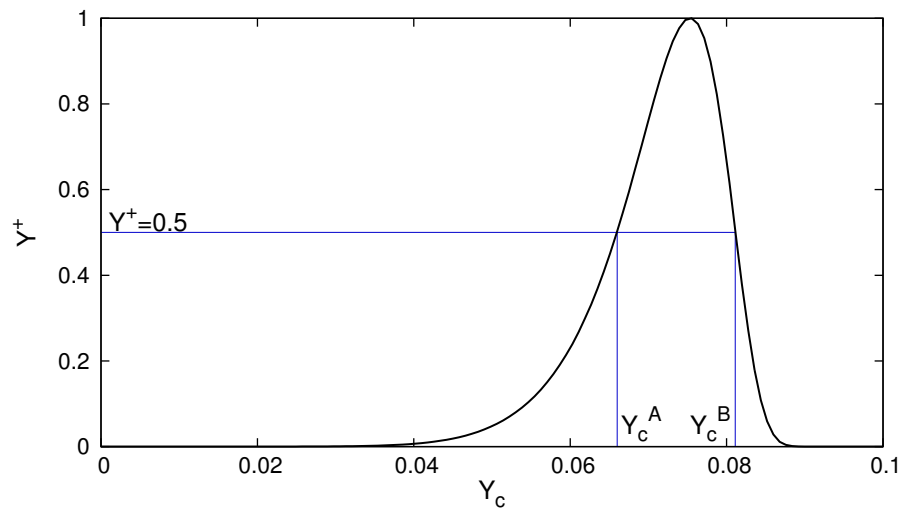
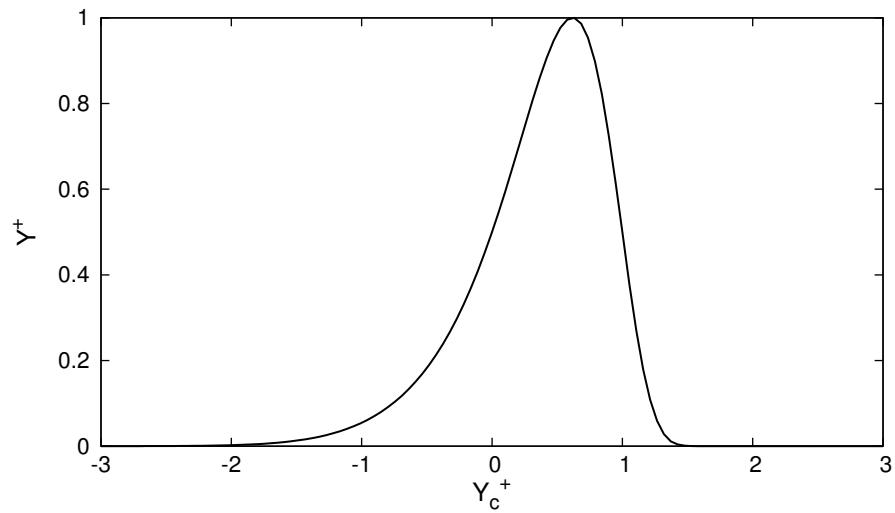
(a) Raw profile $Y(Y_c)$.(b) Normalized profile $Y^+(Y_c)$.(c) Reduced profile $Y^+(Y_c^+)$

Figure 4.1 – Reduction process of a mass fraction profile.

Variable	Standard version	Fast version
Density	$\rho = \rho(Y)$	$\rho = \rho(Y)$
Mixture fraction	$Z = Z(Y)$	$Z = Z(Y)$
Diffusion coefficients	$\mu = \mu(Y), \lambda = \lambda(Y),$ $D_k = D_k(Y), k \in M$	$\mu = \mu(Y_M), \lambda = \lambda(Y_M),$ $D_k = D_k(Y_M), k \in M$
Molar mass	$W = W(Y)$	$W = W(Y_M)$
Thermal capacities	$c_v = c_v(Y), c_p = c_p(Y)$	$c_v = c_v(Y_M), c_p = c_p(Y_M)$
Temperature	$T = T(Y)$	$T = T(Y_M)$
Pressure	$P = \rho(Y) \frac{R}{W(Y)} T(Y)$	$P = \rho(Y) \frac{R}{W(Y_M)} T(Y_M)$
Speed of sound	$c = c(Y)$	$c = c(Y_M)$
Correction velocity	$V^c = V^c(Y)$	$V^c = V^c(Y_M)$
Enthalpy diffusion term in the energy equation	$\sum_{k=1}^{N_{sp}} h_{s,k} Y_k V_{k,i}$	$\sum_{k \in M} h_{s,k} Y_k V_{k,i}$

Table 4.1 – Differences in the calculation of several variables with the “standard” and the “fast” version of the HTTC solver of SiTCom-B.

to reach a given physical time. However, with the “standard” version of the HTTC solver presented previously, the cost of an iteration is nearly identical to the cost of an iteration of the FTC solver. Even though the tabulated species are not transported anymore, the full set of species is still required to solve the conservation equations of the transported species (Eq. (2.43)), for instance to compute the transport coefficients and the correction velocity. Some computational time is saved by not computing the convective term of the transport equation ($\partial(\rho u_i Y_k)/\partial x_i$) for the tabulated species, but it is counterbalanced by the time spent in the routine dedicated to table reading and interpolations.

A more advanced version of the HTTC solver, called “fast” HTTC, is now presented. In this version, the set M of the transported species is used instead of the full set $M + m$, wherever it is possible to use it in the solver, to decrease the duration per iteration, and consequently, the global cost of the simulation.

In the fast version, the source terms of the transported species and the heat release rate are still computed with the whole set of species. This is a crucial point of the HTTC method, in order to take the full detailed kinetic mechanism into account during the simulation. However, several variables are computed using only the transported species set, as shown in Table 4.1. Those variables are selected carefully though, not to violate the mass conservation in the flow, and not to jeopardize the robustness of the solver. With this constraint in mind, the density ρ and the mixture fraction Z are calculated using the full set of species as well, as it is done for the standard version. Since the sum of the mass fractions of the tabulated species is very small compared to the transported species ($< 1\%$ for methane flames and $< 5\%$ for kerosene flames), the contribution of the tabulated species to the other quantities presented in Table 4.1 is not significant, and consequently the latter can be computed using the transported species only.

A very large proportion of the total mass of the flow is due to a small number of species (the reactants and the main products), and all the other radical and minor intermediate species have a very small concentration. The number of transported species is then expected to be dramatically reduced, whatever the kinetic mechanism used. Indeed, those main species (O_2 , H_2O , CO , CO_2 , N_2 , etc.) are generally present in all mechanisms, and only the amount of minor species will differ from one mechanism to another. Section 4.3.2 will show that, in practice, the number of transported species is always around 15, whatever the size of the mechanism, from a few tens to several hundreds of

species. Consequently, with the fast version of HTTC the cost per iteration is expected to stay of the same order of magnitude when the mechanism grows, in spite of an additional cost due to a larger number of chemical reactions to compute, and a larger table to read. However, the impact of such extra computations can be limited by using the proper code optimizations, as presented in Chapter 3. Thus, the simulation cost is expected to moderately increase even if the size of the mechanism largely grows.

The results obtained with the two versions of the HTTC solver are compared in section 4.4.2, as well as the gain on the simulation cost. The mass conservation issue is discussed in section 4.4.4. The “fast” version of HTTC has been developed at the same time as new features were added in the standard version. Therefore, in this chapter and the next chapter, it will be stated whether the standard or the fast version of HTTC is used.

4.1.3 Overview of the HTTC solver in SiTCom-B

In the original work of Ribert *et al.* on HTTC [188], the method was implemented and tested in the 1D code REGATH. One of the main goals of this PhD thesis is the implementation of the method in a DNS/LES code, and the developments of the additional features required to make it work in the frame of a DNS code.

This section provides an overview of the HTTC solver developed during this thesis in the DNS/LES code SiTCom-B. This solver shares many features with the FTC solver. Consequently, it takes advantages of the optimizations of the latter (see Chapter 3). Some tasks are executed using different pieces of code, while some other tasks are performed by the same routines as the FTC solver, but using the transported species only, or the full set of species, depending on the selected version of the solver (*standard* or *fast*).

An overview of the detailed chemistry solver has been given in Chapter 3. The tasks that differ from the FTC solver are now presented. For a better understanding, all the steps described thereafter are summed up in table 4.2. The initialization step is nearly identical for the two solvers. The thermodynamical data of species involved in the kinetic mechanism (coefficients a , b , c and d seen in section 3.4.2.1) and the Arrhenius coefficients of the chemical reaction (coefficients A , β and T_a) are fetched in a data file. The primitive variables (pressure P , temperature T , velocity vector U and species Y) are read from an initial solution, which is set before the simulation. For the optimization of the computational cost, the diffusion coefficients and the chemical rate constants are computed for several temperature values, as explained previously. The HTTC solver requires an additional step, to read and store in the memory of every MPI process the table that contains the tabulated species mass fractions.

After the solver is initialized, the time loop is started, and iterated until the final time set by the user is reached. At the beginning of each iteration of the loop, the value of the time step is calculated for both solvers with the procedure described in Chapter 3, to ensure the stability of the explicit Runge-Kutta algorithm. However for the HTTC solver, the tabulated species are not taken into account in this calculation, since they are not transported. This point is essential, since the chemical timestep requirement to solve for the tabulated species (*i.e.* the radical species) would be several orders of magnitude below those for transported major species. This is actually the main interest of HTTC, that is responsible for the largest part of the savings on the computational cost (the remaining part being the decrease of the cost per iteration expected with the *fast* formulation).

The next part is the transport of conservative variables. The diffusive and convective fluxes are computed for the energy, the momentum, and the full set of species for FTC, or the transported species for HTTC. With both solvers, the species and energy source terms are computed using the full set of

	FTC	HTTC
Pre-processing	Thermodynamic database reading (thermal capacities, enthalpies, diffusion coefficients, etc)	
		Kinetic mechanism reading
	Mesh reading and primitive variable fields (P, T, U, Y_k) reading from initial solution	
	Initialization of conservative variables ρE , ρU et ρ_k from primitive variable fields	
	-	Table reading $Y_m = Y_m(Y_c, S)$
At the beginning of every iteration : time step computation Δt	Computation of the convective time step Δt^C and of the diffusive time steps $\Delta t_{\rho E}^D$ and $\Delta t_{\rho U}^D$	
	Computation of the diffusive time steps $\Delta t_{\rho_k}^D$ and of the chemical time step Δt^{chem} using the whole set of species	Computation of the diffusive time steps $\Delta t_{\rho_k}^D$ and of the chemical time step Δt^{chem} using the transported species only
	$\Delta t = \min(\Delta t_C, \Delta t_{\rho E}^D, \Delta t_{\rho U}^D, \Delta t_{\rho_k}^D \Delta t^{\text{chem}})$	
During every Runge-Kutta step : transport of conservative variables	Computation of convective and diffusive fluxes of ρE et ρU	
	Computation of the convective and diffusive fluxes of the partial densities ρ_k , for the whole set of species	Computation of the convective and diffusive fluxes of the partial densities ρ_k , for transported species only
	Computation of the species source terms, using every species and reaction of the full kinetic mechanism	
	Update of the conservative variables	
During every Runge-Kutta step : computation of all the variables of the flow	Computation of the mixture density : $\rho = \sum_{k=1}^{N_{\text{sp}}} \rho_k^n$	Computation of the mixture density : $\rho = \sum_{k \in M} \rho_k^n + \sum_{k \in m} \rho_k^{n-1}$
	Computation of every mass fraction : $Y_k = \rho_k / \rho, k \in [1, N_{\text{sp}}]$	Computation of transported species mass fractions : $Y_k = \rho_k / \rho, k \in M$
	-	Computation of the progress variable from the transported species : $Y_c = Y_c(Y_M)$
	-	Reading of the tabulated species mass fractions : $Y_m = Y_m(Y_c, S)$
	-	Computation of the mixture fraction using the whole set of species : $Z = Z(Y)$
	Computation of remaining variables (diffusion coefficients, T , P , thermal capacities, gradients, etc), using the whole set of species, or the transported species only, if HTTC “fast” is used.	

Table 4.2 – Changes introduced by the HTTC solver in the simulation process, compared with the FTC solver. The steps shared by both solvers are written in black, while the different steps are colored.

species and reactions. Once the source terms and the fluxes are known, the transported variables are updated to the next time step using the explicit Runge-Kutta scheme.

At every step of the Runge-Kutta scheme, all the different quantities of the flow are updated, so that the source terms and the fluxes of the conservative variables, which depend on those quantities, can be computed at the next step. The full procedure is summarized in Chapter 3 (section 3.4.2). At the beginning of this procedure, the species mass fractions must be calculated. With FTC, it is done with a simple division for the full set of species ($Y_k = \rho_k/\rho$, $\forall k$). With the HTTC solver, however, a special procedure is used, and is now presented. The density ρ must be calculated first, in order to get the transported species mass fractions from the transported partial densities ρ_k with a simple division ($Y_M = \rho_M/\rho$), as a second step. To ensure mass conservation, ρ must include both the transported and the tabulated species, the latter being still unknown at the current time step n . The tabulated species evaluated at the previous time step $n - 1$ are used :

$$\rho = \sum_{k \in M} \rho_k^n + \sum_{k \in m} \rho_k^{n-1} = \sum_{k \in M} \rho_k^n + \sum_{k \in m} \rho^{n-1} Y_k^{n-1} \quad (4.7)$$

The third step is the calculation of the progress variable using Y_M . Then, the tabulated mass fractions Y_m are read in the table. The control parameters Y_c and $S = (Z_u, P_u, T_u)$ must be known at this point. As mentioned before, Y_c is locally computed using the transported species mass fractions. To be consistent, S should be determined locally as well. Most of the tabulation methods (e.g. FPI [74], FGM [221]) are confronted with this issue, which is not trivial :

- The local value Z of the mixture fraction is not necessarily suitable for accessing the table, since it can be different from the one used to build up the look-up table (i.e. Z_u), because of the differential diffusion effects. This phenomenon can be damaging for the precision of the results and the robustness of the solver, even during the simulation of a 1D premixed flame. In this chapter, Z is computed at the inlet ($Z = Z_u$), and this value is used in each cell of the simulation domain. Moreover, since Z can vary in the flame area, it must be computed using the full set of species. Indeed, the Bilger's formula is based on atomic mass fractions, and could be erroneous in the flame if the radical species are not taken into account. As for density, the value of Z used to access the table at the time step n is computed at the time step $n - 1$. This is why it is updated after the tabulated mass fractions.
- The local value of the pressure is computed using the perfect gas law $P = \rho r T$, where ρ , r and T mainly depends on the transported species, because the mass fraction of the tabulated species is small, and thus they are not read in a table. Consequently, the HTTC solver is expected to perform density and temperature calculations safely, without additional correction related to the compressible formulation of the code (such as TTC used along the FPI solver, see Ch. 3), and is expected to be less sensitive to small pressure variations. The local value P is used to access the table. However, this issue is out of the scope of this work, because in all the simulations presented here, the pressure variations are around 1 Pa.
- The value of T_u is irrelevant in the reactive area or in the burnt gases, and cannot be calculated locally. Another variable based on enthalpy should be instead used as a control parameter. This point has not been addressed in this thesis. No dilution by burnt gases nor thermal transfer has been considered, so the value of T_u used to access the table is equal to its value at the inlet boundaries.

If a "raw" table is used, the tabulated mass fractions are simply read using a multi-linear interpolation between the points stored in the table, in each cell of the simulation domain. However, the genuine HTTC method makes use of tables based on self-similarity. In this case, in each cell the parameters $Y_{c,m}^A(S)$ and $Y_{c,m}^B(S)$ are first read in the table for all the tabulated species, in order to

calculate the reduced progress variable $Y_{c,m}^+$. Then, the reduced profile of each tabulated species is used to get the reduced mass fractions $Y_m^+ = Y_m^+(Y_{c,m}^+)$. The tabulated species mass fractions are finally computed using the maximum values $Y_m^{\max}$, with the relation $Y_k = Y_k^+ \times Y_k^{\max}$, $\forall k \in m$.

Finally, all the remaining variables are computed using the full set of species, or the transported species only, depending whether the *standard* or the *fast* version of the HTTC solver is selected. For FTC, these variables are built with the full set.

The next section is an investigation on the self-similar properties of hydrocarbon flames, for different fuels. The third section focuses on the table building process. The last section of this chapter provides HTTC one-dimensional results compared with fully-detailed chemistry flames, and discusses computational time issues.

4.2 Self-similarity in hydrocarbon flames

In the first subsection, the principle of self-similarity and profile reduction are illustrated with a light fuel, methane. Additional features of the self-similarity properties in heavy hydrocarbon flames are presented in the second subsection. The third subsection shows that the self-similarity is a really generic property that also applies in very large kinetic mechanisms. The particular case of NO_x is investigated afterwards.

4.2.1 Radical species in methane flames

Figure 4.2(a) shows the mass fraction of the HCCO radical species in methane-air flames, for several sets S of conditions in fresh gases, computed with the kinetic mechanism of Lindstedt. All the profiles $Y(Y_c)$ feature different widths and heights, because different chemical reactions with different reactions rates are involved for each S . However every profiles have a similar shape. Consequently, a proper transformation, that consists in dividing the mass fraction and the progress variable by the height and the width of each profile, respectively (Eq. (4.3) and Eq. (4.5)), leads to reduced profiles that are nearly superimposed (Fig. 4.2(b)). Thus they can be approximated by a single average profile, in order to get more compact tables and save memory, as mentioned before.

This self-similarity property applies to all the radical species in methane flames (Fig. 4.3). Here a database of a 3500 1D premixed flames has been computed with the code REGATH, with $\phi_L = 0.6$, $\phi_R = 1.4$, $P_{\min} = 1$ bar, $P_{\max} = 20$ bar, $T_{\min} = 300$ K, and $T_{\max} = 700$ K. These boundaries cover a large range of applications, and are supposed to be compatible with the validity domain of the kinetic mechanism of Lindstedt. For some species, a nearly perfect self-similarity of the profiles is reached, while for some other species, some discrepancies between the profiles are observed for the different sets S . The influence of such discrepancies on the simulations run with HTTC will be discussed later on.

The self-similarity is not limited to premixed flames, and can be extended to several canonical problems, such as strained premixed flames, diffusion flames, or self-ignition reactors (Fig. 4.4). In other words, for a given kinetic mechanism, the mass fraction profiles of every radical species can be approximated by a single reduced profile for all the canonical combustion problems. Then, HTTC tables could be based on other types of flames than premixed flames, but in this study, premixed flames will only be used.

An “inter-species” self-similarity is revealed by placing the reduced profiles of several species on top of each other on a same graph (Fig. 4.5). Several groups based on the shape of the profiles can be established. One single reduced profile could be stored for each group of species, instead of one profile per species. Although this property highlights the strong self-similarity of hydrocarbon flames, it is not really helpful to downsize the table. Indeed, reducing the number of tabulated reduced profiles

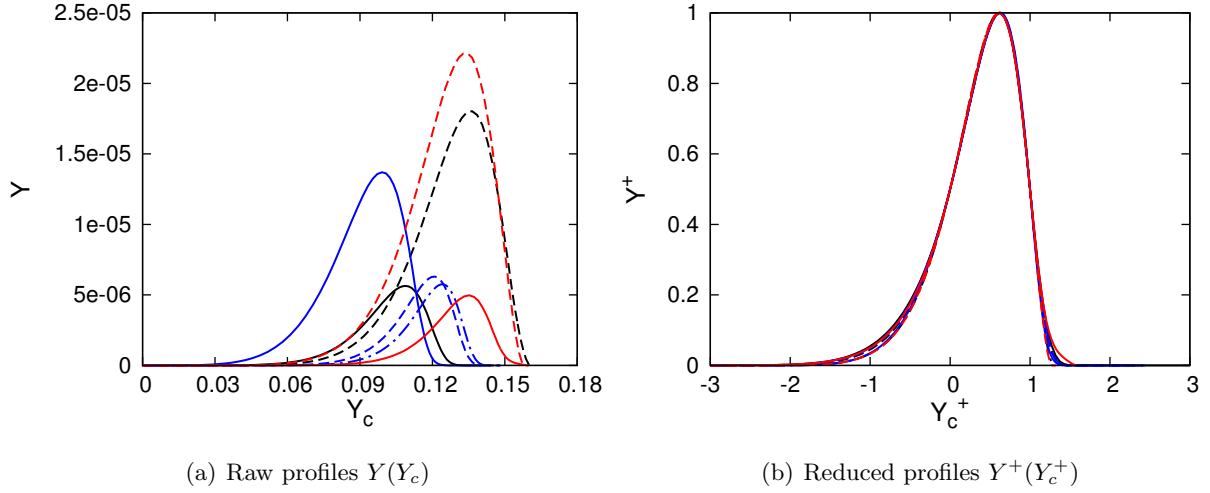


Figure 4.2 – Mass fraction profiles of HCCO in 1D methane/air flames, computed in REGATH using the mechanism of Lindstedt.

— $\phi = 1$, $P = 1$ bar, $T_u = 300$ K, --- $\phi = 1.4$, $P = 1$ bar, $T_u = 300$ K,
 — $\phi = 1$, $P = 1$ bar, $T_u = 700$ K, - - - $\phi = 1$, $P = 10$ bar, $T_u = 300$ K,
 — $\phi = 1$, $P = 20$ bar, $T_u = 300$ K, - - - $\phi = 1.4$, $P = 20$ bar, $T_u = 300$ K,
 — $\phi = 1.4$, $P = 20$ bar, $T_u = 700$ K.

only decrease the number of 1D arrays to store, while one large 3D array is still required for each species to store the reduction parameters.

As an example, the reduction parameters of species CH are displayed versus ϕ_u , T_u and P_u on figure 4.6. When $Y^{\max}$ is plotted versus ϕ_u , its value is nearly zero on the lean side, because the lean flammability limit is close. Then it increases with ϕ_u until it reaches a maximum value on the rich side, and decreases again. $Y^{\max}$ is larger at high fresh gas temperatures, since the chemical reactivity is also larger. In the Y_c space, the width of the species mass fraction profile, defined as the distance between Y_c^A and Y_c^B , is nearly constant. These trends are similar for the other radical species of methane-air flames. Moreover, the evolution of the reduction parameters is monotonic in most cases, whether they are plotted versus ϕ_u , T_u or P_u . Consequently, they can be fitted with simple functions, such as low order polynomials, to downsize even more the table. Ribert *et al.* [188] showed that polynomials with orders between 3 and 5 are sufficient to fit $Y^{\max}(\phi)$, $Y_c^A(\phi)$ and $Y_c^B(\phi)$ with a proper precision. The table can store the 4 to 6 polynomial coefficients, instead of all the points in the ϕ direction. As an example, if the original table is built using 40 values for ϕ , the “fitted” table is downsized by a factor 10. Such a procedure could be helpful if additional control parameters were added to the table (a second mixture fraction, stretching, etc).

The progress variable should be defined carefully as soon as it is used in the frame of tabulated chemistry methods, especially for HTTC, where it has a significant impact on the self-similarity of the species profiles. In [159], an automatic procedure is used to set the α_k coefficients (Eq. (4.1)), to get an optimized Y_c . It is shown in [188] that, with this optimized progress variable, $Y_{c,k}^A(\phi)$ and $Y_{c,k}^B(\phi)$ are nearly constant versus ϕ for every tabulated species (variations are less than 2%), and are identical for all the species. It means that $Y_{c,k}^A(\phi) = Y_c^A, \forall \phi, \forall k \in m$ and $Y_{c,k}^B(\phi) = Y_c^B, \forall \phi, \forall k \in m$, and consequently $Y_{c,k}^+(\phi) = Y_c^+ = (Y_c - Y_c^A)/(Y_c^B - Y_c^A), \forall \phi, \forall k \in m$. A single value of Y_c^A and Y_c^B is needed for the whole table. Only the $Y_k^{\max}(\phi)$ arrays are still required, reducing the table size by a factor 3. However, in this work the definition $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ is used.

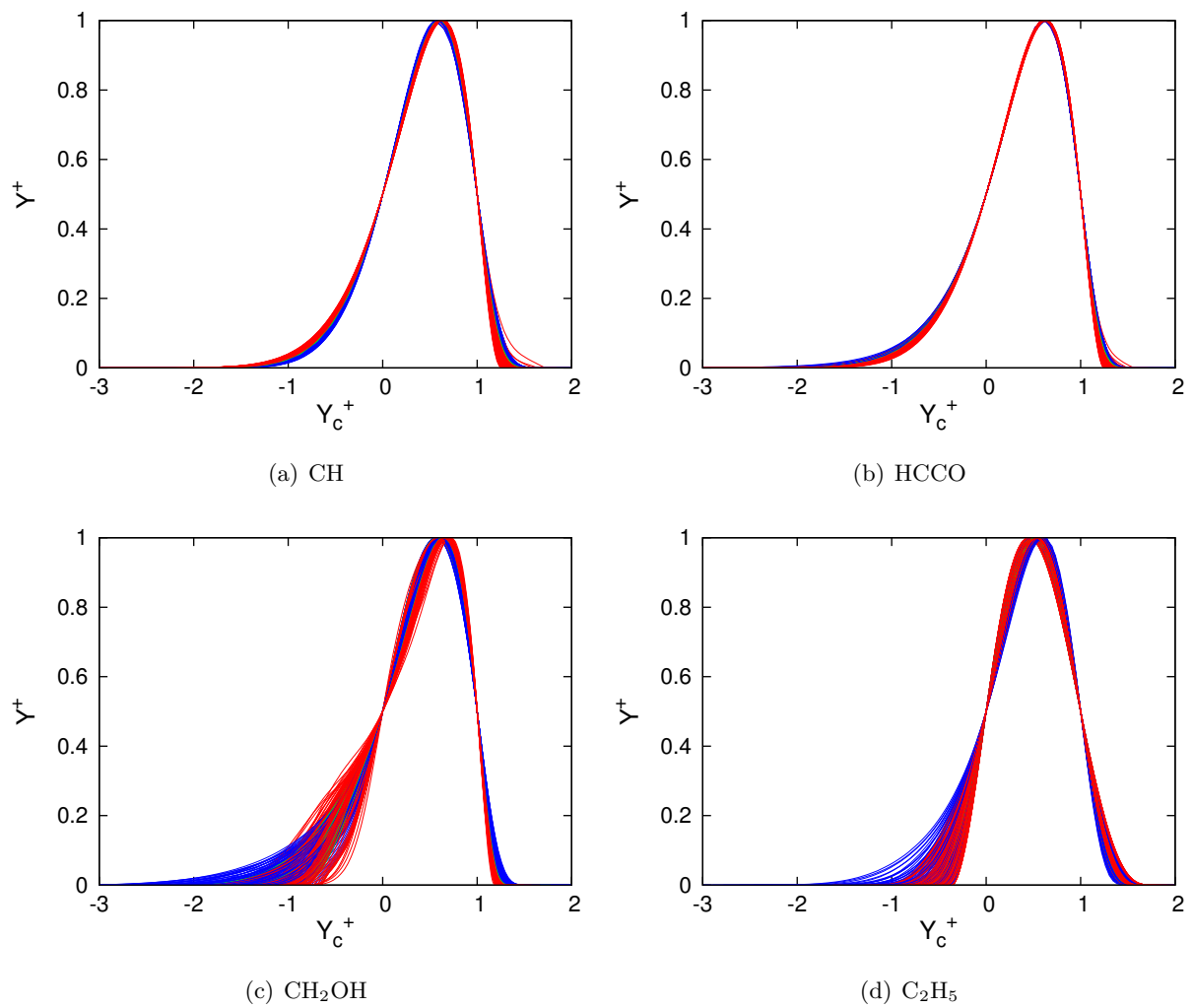


Figure 4.3 – Reduced mass fractions profiles in 1D methane/air laminar premixed flames, for a few species of the full database. — lean flames, — stoichiometric flames, — rich flames.

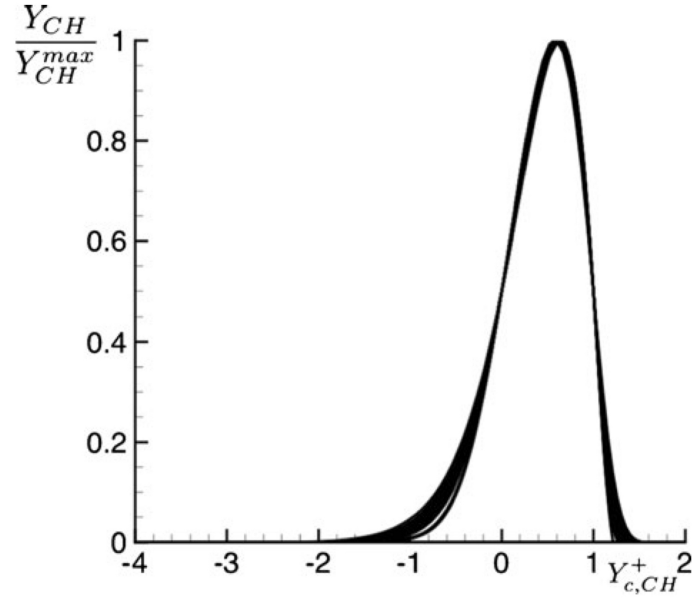


Figure 4.4 – Reduced CH mass fraction profiles for 18 canonical combustion problems [188] : laminar premixed flames ($\phi \in [0.6, 1.4]$), laminar strained premixed flames ($\phi = 0.9$, strain rate between 120 and 6500 s^{-1}), diffusion flames (strain rate varying between 80 s^{-1} and the quenching limit), and zero-dimensional self-ignition ($P_0 \in [10, 20]$ atm, $\phi \in [0.8, 1.2]$, $T_0 \in [900, 1300]$ K).

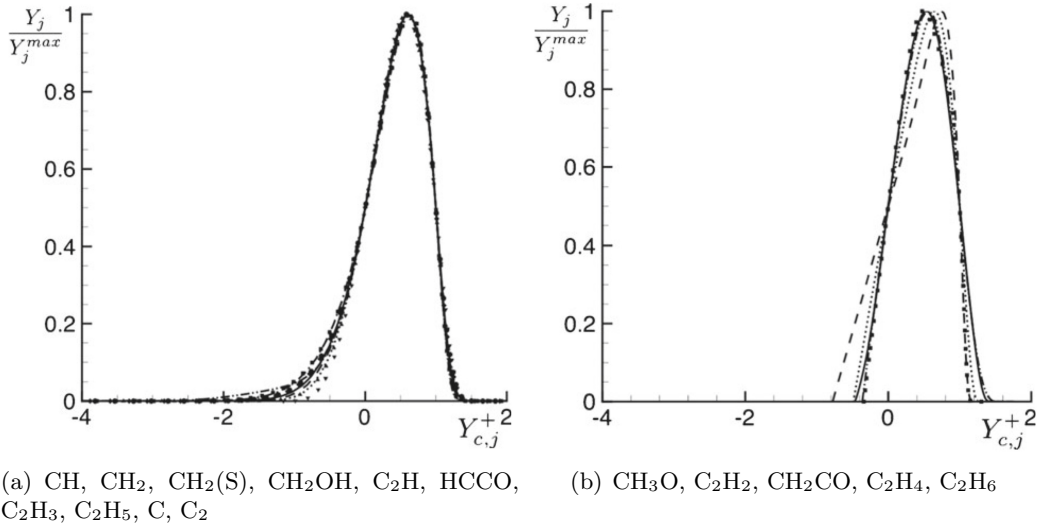
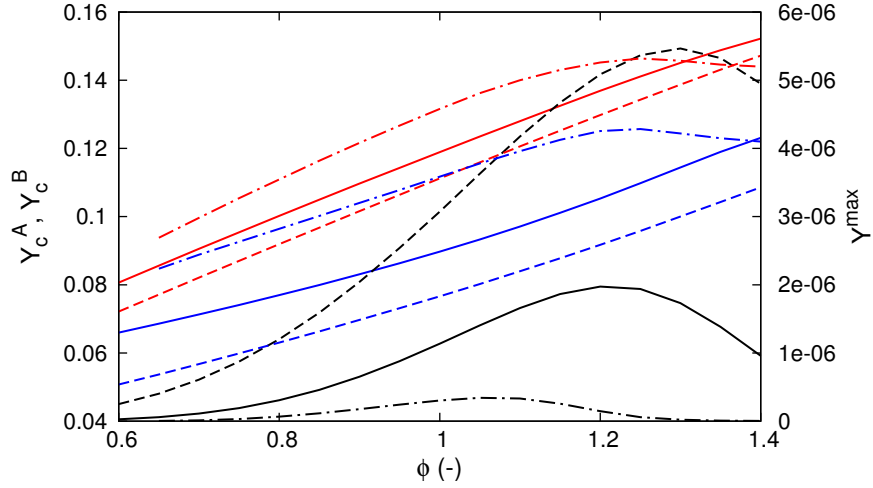
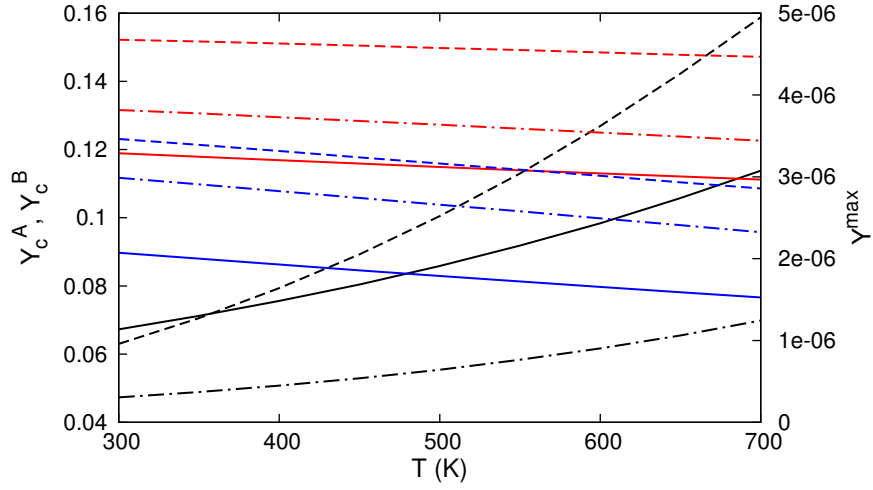


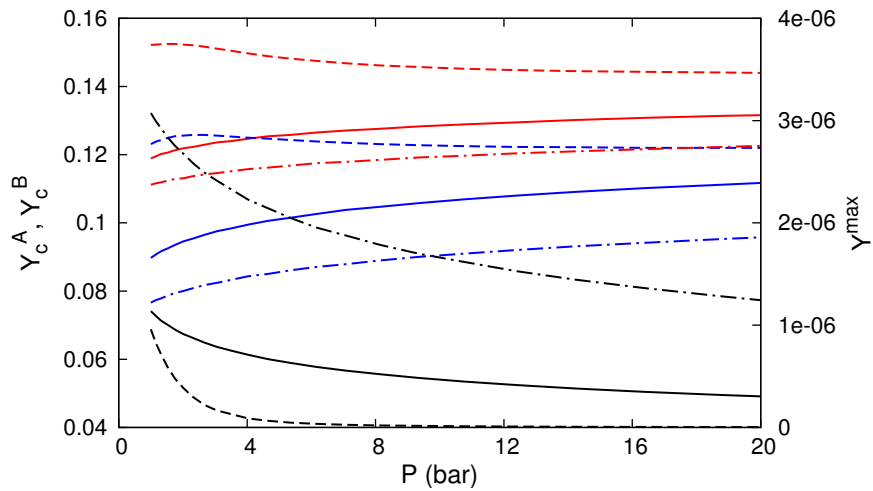
Figure 4.5 – Reduced mass fraction profiles of minor species in stoichiometric premixed methane/air flames [188].



(a) Solid lines : $P = 1$ bar, $T_u = 300$ K. Dashed lines : $P = 1$ bar, $T_u = 700$ K. Dash-dotted lines : $P = 20$ bar, $T_u = 300$ K.



(b) Solid lines : $P = 1$ bar, $\phi = 1$. Dashed lines : $P = 1$ bar, $\phi = 1.4$. Dash-dotted lines : $P = 20$ bar, $\phi = 1$.



(c) Solid lines : $\phi = 1$, $T_u = 300$ K. Dashed lines : $\phi = 1.4$, $T_u = 300$ K. Dash-dotted lines : $\phi = 1$, $T_u = 700$ K.

Figure 4.6 – Y_c^A (blue lines), Y_c^B (red lines) and Y_{max} (black lines) vs (a) the equivalence ratio ϕ , (b) the fresh gas temperature T_u and (c) the pressure P , for species CH in methane/air flames computed with the kinetic mechanism of Lindstedt.

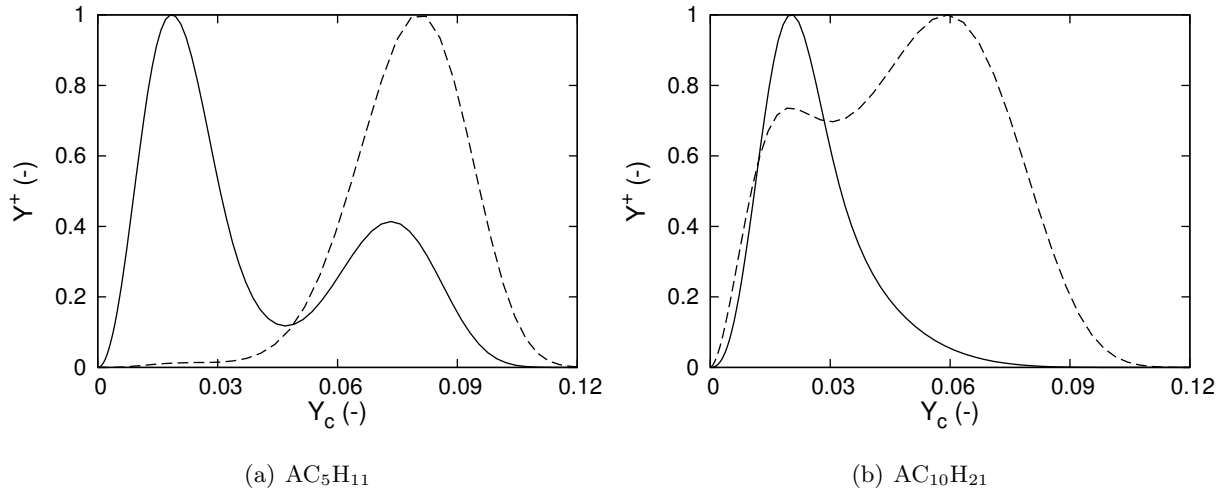


Figure 4.7 – Reduced mass fraction of heavy radical species versus the progress variable $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$, in 1D decane/air flames computed with REGATH with the kinetic mechanism of Luche *et al.* — ($\phi = 1$, $T_u = 500$ K, $P_u = 1$ bar), --- ($\phi = 1.4$, $T_u = 700$ K, $P_u = 10$ bar).

4.2.2 Kerosene flames

4.2.2.1 Multi-zone self-similarity

In methane-air flames, all the radical species mass fractions increase and reach a maximum value before they decrease to go to zero again. A simple transformation, which consists in going from the “raw” $Y(Y_c)$ profiles to the “reduced” $Y^+(Y_c)$ profiles, is sufficient to have these single-peak reduced profiles nearly overlayed on top of each other, with small discrepancies.

In kerosene-air flames, heavy compounds of the fuel that contain around ten carbon atoms break down before the heat is released, as shown in Chapter 3. During this process, other heavy and medium species are formed, which in turn break down into smaller and lighter species, similar with those found in methane flames. The intermediate medium and heavy species mass fraction profiles can feature either a single-peak or double-peak shape, unlike the light species that always lead to single-peak profiles. Moreover, depending on the value of S , single or double-peak profiles can be observed for a given species (Fig. 4.7).

In order to study the impact of this particular behavior on the self-similar capability of kerosene flames, a database of 2000 1D premixed flames has been generated with REGATH using the kinetic mechanism of Luche, previously introduced in Chapter 3. The boundary Ω_S of the database is defined by $\phi_L = 0.6$, $\phi_R = 1.4$, $P_{\min} = 1$ bar, $P_{\max} = 20$ bar, $T_{\min} = 500$ K, and $T_{\max} = 700$ K.

In the frame of HTTC, the double-peak radical species will be tabulated. To ensure that the table has a reasonable size, these species must take advantage of the self-similarity as well. Their mass fraction must be calculated with a good accuracy from the reduced profiles and the reduction parameters, in spite of their particular double-peak shape. They are the first step of the chemical process, since they lead to all the other lighter species when they break down. Consequently, they are as important as the set of light species that are responsible for the heat release. In the full database, double-peak profiles are encountered, for at least one set $S \in \Omega_S$, for 14 species.

As expected, when the classic single-peak reduction procedure is applied to the full database, the reduced profiles are not overlaid properly on a single curve, for species with double-peak shape occurrences (Fig. 4.9(a)). Even if the single-peak curves match an arbitrary single profile, which will be stored in the HTTC table, the double-peak profiles are all different and feature large discrepancies

with the stored single-peak profile. Very large errors would occur when reading the mass fractions of these species in the table. In this context, it seems obvious that this tabulation process is not satisfactory and must be adapted for these species.

A similar issue occurs during the auto-ignition of heavy alkanes including cool-flame effects, where the source term of the fuel versus a progress variable feature the same kind of shape, with several local extrema. Ribert *et al.* [189] proposed a procedure to deal with such cases, by splitting the Y_c -space to separate the local extrema and apply different reduction formulas on each individual area to recover the self-similarity property.

A similar multi-zone procedure is now presented. Here, the double-peak profiles feature two local maxima, and thus, a local minimum between the two maxima (Fig. 4.8(a)). First, a few notations are introduced. For the sake of brevity, the subscript k for the species will be omitted. The location of the local minimum in the Y_c space is denoted $Y_{c,2}$. Mathematically, it reads :

$$\begin{cases} Y(Y_{c,2}) \neq 0 \\ \left. \frac{\partial Y}{\partial Y_c} \right|_{Y_{c,2}} = 0 \\ \left. \frac{\partial^2 Y}{\partial Y_c^2} \right|_{Y_{c,2}} > 0 \end{cases} \quad (4.8)$$

The value of the mass fraction at the first local maximum, the local minimum and the second local maximum, are denoted respectively Y^{imax1} , Y^{lmin} and Y^{imax2} . They are defined as follows :

$$Y^{\text{lmin}} = Y(Y_{c,2}) \quad (4.9a)$$

$$Y^{\text{imax1}} = \max_{Y_c \in [0, Y_{c,2}]} Y(Y_c) \quad (4.9b)$$

$$Y^{\text{imax2}} = \max_{Y_c \in [Y_{c,2}, Y_{c,eq}]} Y(Y_c) \quad (4.9c)$$

Additional variables $Y_{c,1}$ and $Y_{c,3}$ are introduced :

$$\begin{cases} Y(Y_{c,i}) - Y^{\text{lmin}} = 0, & i \in \{1, 2, 3\} \\ Y_{c,1} < Y_{c,2} < Y_{c,3} \end{cases} \quad (4.10)$$

In order to rescale each local extrema separately, the Y_c -space is split in 4 parts, denoted A, B, C and D (Fig. 4.8(b)). They extend respectively on the intervals $[0, Y_{c,1}]$, $[Y_{c,1}, Y_{c,2}]$, $[Y_{c,2}, Y_{c,3}]$ and $[Y_{c,3}, Y_{c,eq}]$. For the single-peak profiles, the reduced mass fraction Y^+ and progress variable Y_c^+ are still computed using the previous Eq. (4.3) and Eq. (4.5). On the other hand, for the double-peak profiles, they are now calculated using the relations in table 4.3 instead. The parameters α and β have been added so that the derivative $\partial Y^+ / \partial Y_c^+$ is continuous at the interfaces A-B and C-D, in order to get properly overlaid profiles. During the table building process, an additional double-peak reduced mass fraction profile is stored for species that need it (Fig. 4.9(b)). Depending on the conditions encountered during the simulation, the proper profile is used. The validation of this method is presented later on, in section 4.4.

4.2.2.2 Species lumping

During the combustion of large hydrocarbons such as decane, species with very similar thermodynamical properties are formed in the flame area. Lumping together such species, which are generally

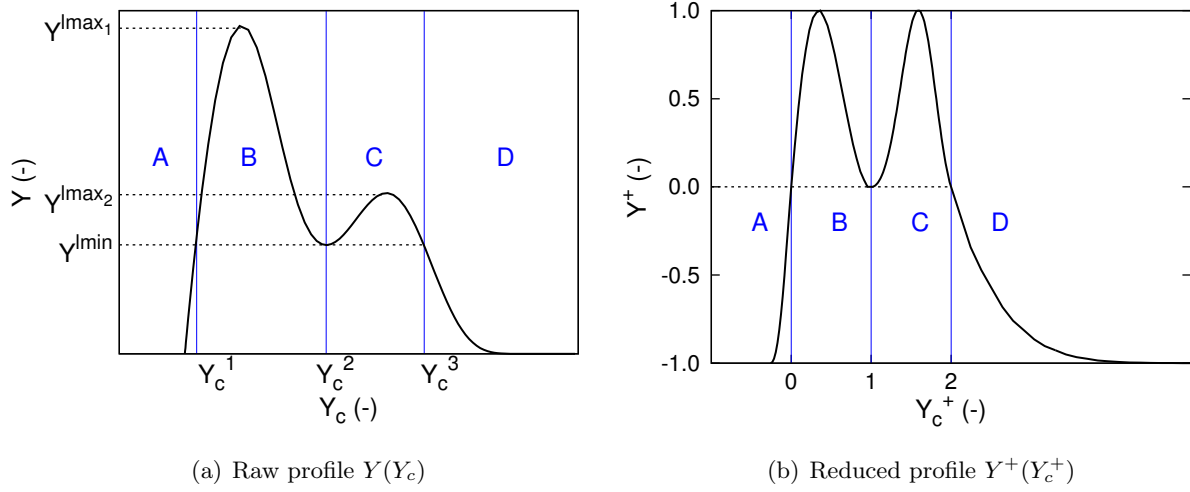


Figure 4.8 – Reduction process for the double-peak profiles, using multi-zone self-similarity.

Zone	Y^+	Y_c^+	α	β
A	$\frac{Y - Y^{lmin}}{Y^{lmin}}$	$\frac{\alpha Y_c - \beta - Y_{c,1}}{Y_{c,2} - Y_{c,1}}$	$\frac{Y^{lmax1}}{Y^{lmin}}$	$Y_{c,1}(\alpha - 1)$
B	$\frac{Y - Y^{lmin}}{Y^{lmax1}}$	$\frac{Y_c - Y_{c,1}}{Y_{c,2} - Y_{c,1}}$		
C	$\frac{Y - Y^{lmin}}{Y^{lmax2}}$	$1 + \frac{Y_c - Y_{c,2}}{Y_{c,3} - Y_{c,2}}$		
D	$\frac{Y - Y^{lmin}}{Y^{lmin}}$	$1 + \frac{\alpha Y_c - \beta - Y_{c,2}}{Y_{c,3} - Y_{c,2}}$	$\frac{Y^{lmax2}}{Y^{lmin}}$	$Y_{c,3}(\alpha - 1)$

Table 4.3 – Definition of the reduced progress variables Y_c^+ and the reduced mass fractions Y^+ with the multi-zone self-similarity.

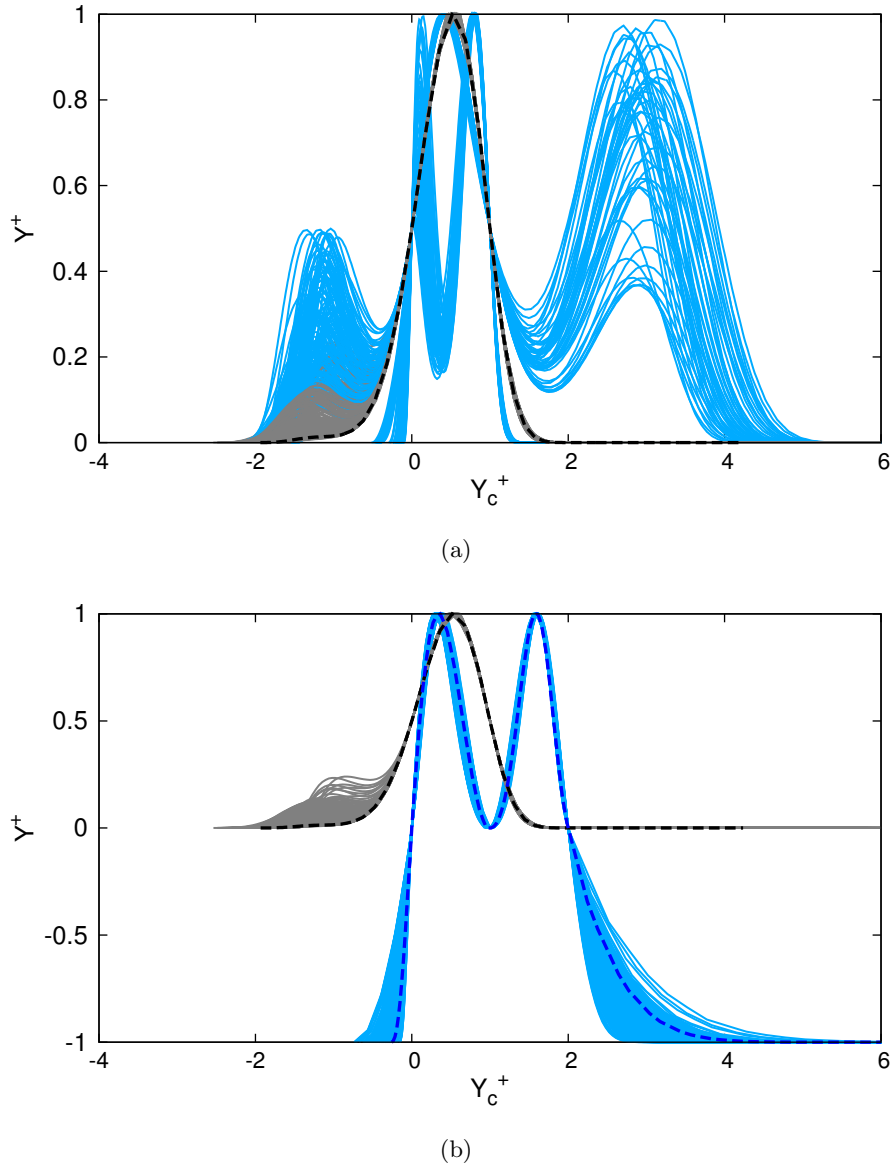


Figure 4.9 – Reduced mass fractions profiles of AC_5H_{11} in 1D decane/air laminar flames for the full database. (a) All the profiles are processed as single-peak profiles. (b) The double-peak profiles are reduced using the multi-zone method. — single-peak profiles, — double-peak profiles, --- stored single-peak profile, --- stored double-peak profile.

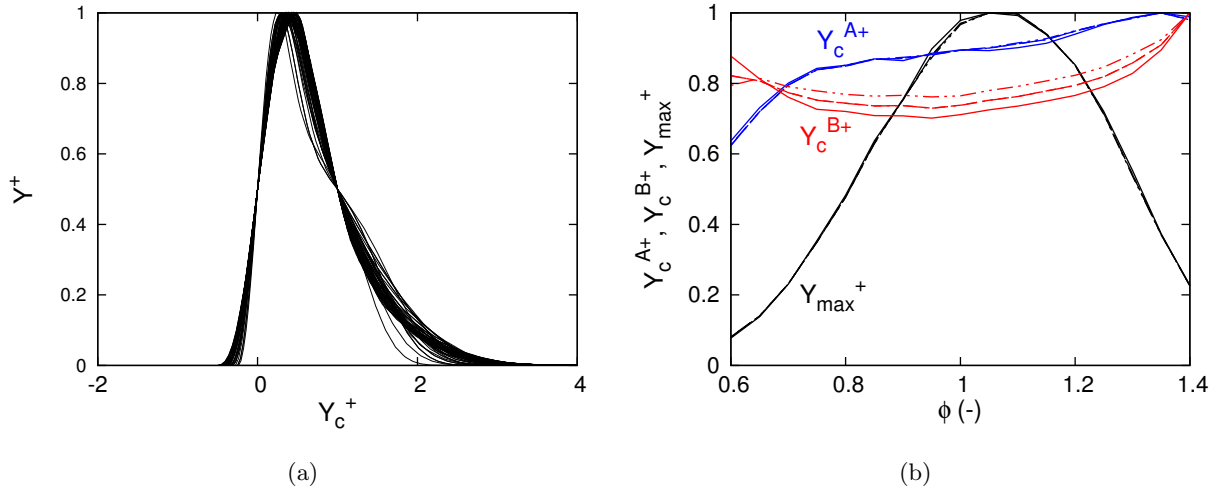


Figure 4.10 – HTTC table for the 4 lumped isomers of $C_{10}H_{21}$ in decane/air flames for $\phi_u \in [0.6, 1.4]$ ($P = 1$ bar and $T_u = 500$ K). (a) Reduced mass fractions profiles. (b) Parameters used for profile reduction (solid lines : AC₁₀H₂₁, dash : CC₁₀H₂₁, dash-dot : DC₁₀H₂₁, dash-double-dot : EC₁₀H₂₁).

isomers with the same chemical formula, can be a way to reduce kinetic mechanisms [68, 91, 163], by solving a unique transport equation for the equivalent “lumped” species instead of all the individual species. In the frame of HTTC, such a method can be used to downsize even more the table. Figure 4.10 shows the reduced mass fraction profiles and the reduction parameters of 4 isomers of $C_{10}H_{21}$, for decane-air flames computed with REGATH, using the mechanism of Lindstedt, for several equivalence ratios.

The mass fraction profiles of the 4 isomers are self-similar, and can be approximated by a single reduced profile. The reduction parameters $Y_c^A(\phi)$, $Y_c^B(\phi)$ and $Y_{max}(\phi)$ are also self-similar. New variables are formed by dividing them by their maximum on the full range of equivalence ratio : $Y_c^{A+}(\phi) = Y_c^A(\phi) / \max_{\phi}(Y_c^A(\phi))$, $Y_c^{B+}(\phi) = Y_c^B(\phi) / \max_{\phi}(Y_c^B(\phi))$, and $Y_{max+}(\phi) = Y_{max}(\phi) / \max_{\phi}(Y_{max}(\phi))$. Memory can be saved by storing only one $Y_c^{A+}(\phi)$, $Y_c^{B+}(\phi)$ and $Y_{max+}(\phi)$ array for all the isomers, plus the value of the maxima on the whole ϕ range, instead of the full arrays for each isomer. Such a procedure could especially be useful to downsize tables built for very large mechanisms, which may contain several sets of isomers.

4.2.3 Self-similarity for very large kinetic mechanisms

So far, results obtained with a detailed mechanism for methane and a skeletal mechanism for decane have been presented. Those mechanisms, with respectively 29 and 91 species, are among the largest mechanisms that can today realistically be used for LES simulations, in the frame of detailed chemistry solvers. Larger mechanisms with hundreds of species could however be considered with HTTC. A particular attention must be paid to the amount of data stored in the table, since the number of tabulated species is very high. Here, the self-similarity turns out to be essential, to get table sizes compatible with the amount of memory available on computers. The goal of the present paragraph is to highlight the universality of the self-similarity property, with an application to the mechanism for iso-octane of Curran *et al.* [42], made of 3598 reversible chemical reactions, involving 857 species.

A small 1D premixed flame library, containing 14 equivalence ratio points, and a single point for the pressure and the fresh gas temperature, is built using REGATH with this mechanism. The boundaries

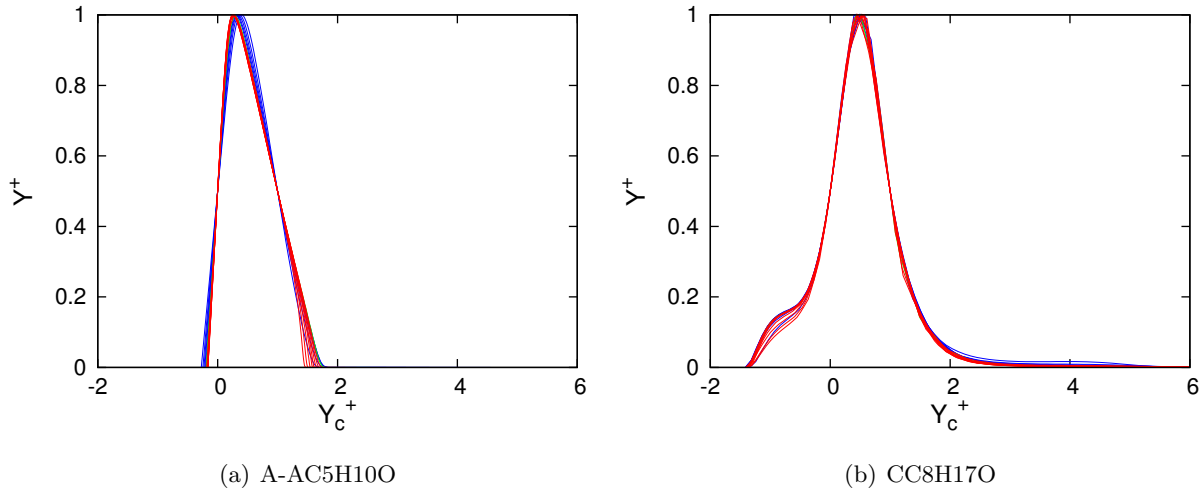


Figure 4.11 – Reduced mass fractions profiles in several 1D iso-octane/air laminar flames for $\phi_u \in [0.5, 1.8]$, $P = 1$ bar and $T_u = 500$ K (Chemkin nomenclature is used to name species).
— lean flames, — stoichiometric flames, — rich flames.

of the table are $\phi_L = 0.5$, $\phi_R = 1.8$, $P_{\min} = P_{\max} = 1$ bar and $T_{\min} = T_{\max} = 500$ K. This limited sample is expected to be representative of a full table with several points in P_u and T_u directions, because a large range of equivalence ratios is considered. Indeed, particular behaviors that could show up in a full flame library (as special shapes of the mass fraction profiles), are likely to be present in this sample, since it contains both lean and rich flames. This part of the study is not completed, since no HTTC simulation has been brought to completion with this mechanism. However, it highlights the potential of HTTC, and is presented as a proof of concept.

In all the flames of this library, most of the radical species have single-peak mass fraction profiles. Some of them feature a double-peak profile for at least one equivalence ratio (149 out of 857 species). Making them self-similar is quite straightforward, using the procedure described previously (Fig. 4.11). A new kind of profile, with 3 peaks, is observed (Fig. 4.12). Here only four species are concerned. If it turns out that these species are not negligible in the kinetic mechanism, a generalized version of the multi-zone procedure, as presented above, could be easily developed and used to store their mass fraction profiles with the self-similarity. Thus, building HTTC tables with a reasonable size is still possible even for very large kinetic mechanisms.

Finally, figure 4.13 shows the reduced mass fraction profiles of radical CH, plotted in all the flames of the previously introduced databases, for the methane, the kerosene and the iso-octane mechanisms. All the profiles are overlaid with very small discrepancies. This proves the generic aspect of the self-similarity, which is consequently expected to be observed for every hydrocarbons.

4.2.4 The particular case of NOx

This section ends with an investigation on the NOx species, in the frame of the self-similarity of the mass fraction profiles. As explained in Chapter 3, the NOx chemistry involves reactions with both small and large temporal and spatial scales. As a consequence, different types of mass fraction profile shapes are observed, depending if they react preferentially in the flame, in the burnt gases, or both. As a reminder (see section 3.1.2.4), type 1 (Fig. 3.4(a)) is special since it contains only N_2 , which is the main “reactant” that leads to all the other NOx species. The type 2 (Fig. 3.4(b)) gathers the species related to large scales that are mostly present in the burnt gases. On the opposite, radical

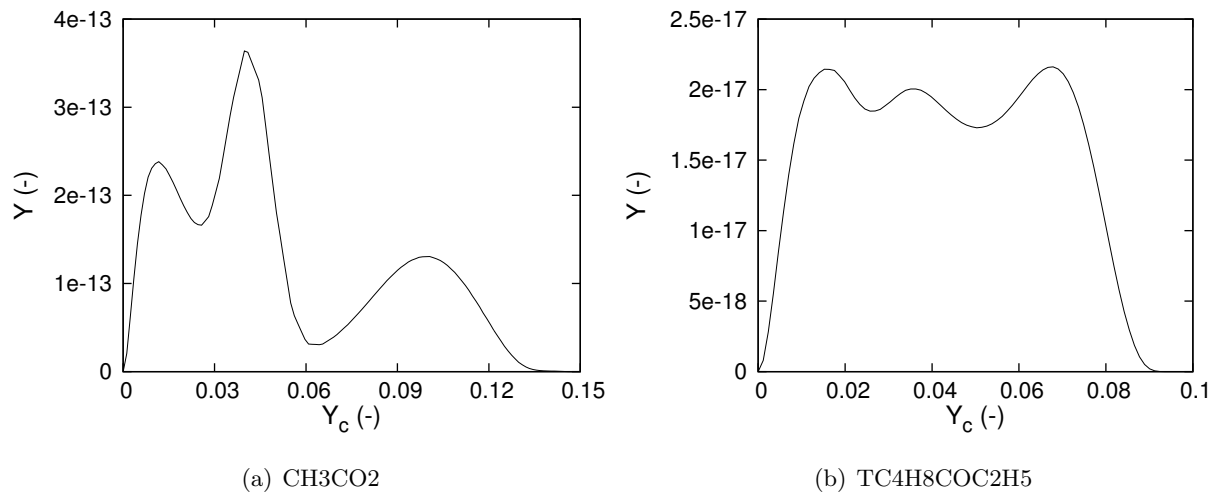


Figure 4.12 – Triple-peak species mass fraction profiles in 1D iso-octane/air laminar flames at $\phi_u = 0.8$, $P = 1$ bar and $T_u = 500$ K (The nomenclature of CHEMKIN files containing the mechanism of Curran *et al.* [42], provided on the Lawrence Livermore National Laboratory website [3], is used to name the species).

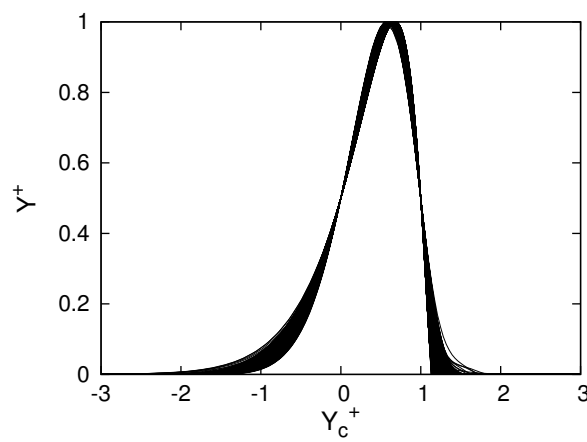


Figure 4.13 – Reduced mass fractions profiles of CH , for the full methane/air, decane/air and iso-octane/air flame databases.

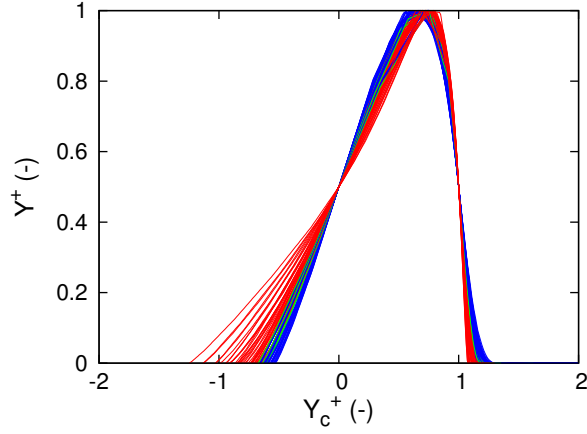


Figure 4.14 – Reduced mass fractions profiles of HCNO for the full database. — lean flames, — stoichiometric flames, — rich flames.

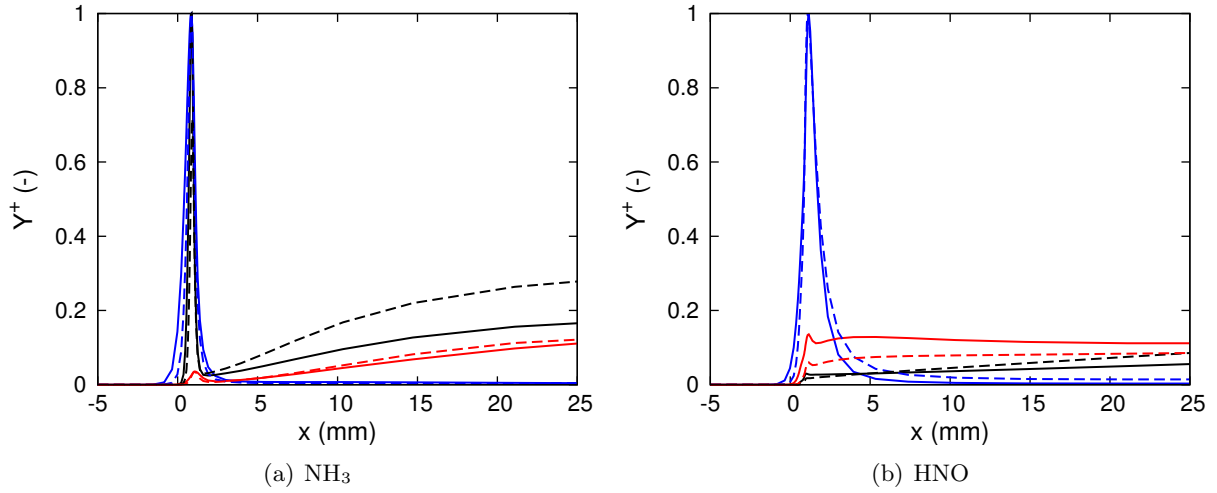


Figure 4.15 – Reduced mass fraction profiles of NH_3 and HNO in 1D methane/air flames at $P = 1$ bar. — $\phi = 0.6$, $T_u = 300$ K, - - $\phi = 0.6$, $T_u = 500$ K, — $\phi = 1.0$, $T_u = 300$ K, - - $\phi = 1.0$, $T_u = 500$ K, — $\phi = 1.4$, $T_u = 300$ K, - - $\phi = 1.4$, $T_u = 500$ K.

NO_x species that are only present in the flame area, are set as type 3 (Fig. 3.4(c)). The rest of the NO_x species, which features both the behavior of types 2 and 3, are gathered in type 4 (Fig. 3.4(d)).

Type 3 species have single-profiles that can be overlaid nearly perfectly, except for the rich flames, where some discrepancies are observed (Fig. 4.14). The other types of NO_x species are out of the scope of the self-similarity capabilities. They have a non-zero mass fraction either in the fresh gases and/or the burnt gases (Fig. 4.15), and implementing a method to get superimposed reduced profiles is not straightforward. An additional procedure, specific to these species, will be used to compute the NO_x mass fractions in the frame of HTTC. It is described in section 4.4.

4.3 Table building

The procedure used to build up the HTTC tables is now presented. Two main stages are required. The first one is the generation of a premixed flame database. It is described in the first sub-section. The second stage consists in processing the flame database, to create a table that will be used by the

HTTC solver during later simulations. A table generation tool has been developed during this PhD thesis to perform automatically the different steps required to build the table.

4.3.1 Flame database generation

4.3.1.1 Building procedure

As for the FPI method presented previously, the HTTC table is built using a 1D premixed flame database, generated with the flame solver REGATH. An iterative Newton algorithm is used to find the steady solution of the 1D species transport and temperature equations, at constant pressure, given a not converged initial solution. Typically, an initial solution is a converged solution for a given set S of equivalence ratio, fresh gas temperature and pressure, which is used to compute another solution for a different set S' . To ensure the convergence of this algorithm, S and S' must be close enough to each other. This condition requires that the spacing between two flames in the database in the ϕ , P and T_u directions is limited. However, this spacing is similar to the spacing actually required to get a well-resolved table.

In practice, the first step is to get a converged solution for an initial set S_0 with the proper kinetic mechanism. A converged solution with the GRI 3.0 mechanism was provided with the code REGATH, for $S_0 = (\phi_0 = 1.0, P_{u,0} = 1 \text{ bar}, T_{u,0} = 300 \text{ K})$. This solution has been adapted to the mechanism of Lindstedt by removing species that are not present anymore, and by adding missing species and setting their initial mass fraction to zero. The code REGATH is then run, until a converged solution, with a restored mass conservation, is reached. To get an initial decane-air flame, a methane flame is firstly computed with the mechanism for the decane. Several computations with mixtures of methane and decane are then run to gradually change the fuel from pure methane to pure decane. The same method is used to get an initial converged solution with the mechanism for the iso-octane.

The second step is to compute several solutions for different values of $\phi \in [\phi_L, \phi_R]$. The first flame is computed using the initial flame as an initial solution, for $\phi_1 = \phi_0 + \Delta\phi$, the second one is computed using the first flame, for $\phi_2 = \phi_1 + \Delta\phi$, and so on. The parameter $\Delta\phi$ has been set to $\Delta\phi = 0.05$ (so there are $N_\phi = 17$ points in the ϕ direction). A similar procedure is then used to generate flames for different values of $T_u \in [T_{\min}, T_{\max}]$, using the first N_ϕ generated flames as initial conditions, with $\Delta T_u = 50 \text{ K}$. Thus, there are $N_{T_u} = 9$ points in the T_u direction for the methane database. This procedure is reproduced in the P_u direction, using the $N_\phi \times N_{T_u}$ previously generated flames as initial solutions. To ensure the convergence of the solver, the value of P_u is increased by 15 % from one flame to another, instead of using a constant ΔP . Indeed, a pressure variations has more visible effects on the flame around the atmospheric pressure. As an example, the flame thickness is plotted versus the pressure for methane air flames on figure 4.16. It varies strongly near $P = 1 \text{ bar}$, while after a given value of P , it remains nearly constant when P keeps increasing. This leads to $N_P = 23$ points in the P direction. The result of this procedure is a full flame database, made of $N_\phi \times N_{T_u} \times N_P$ flames. For methane-air flames it contains $17 \times 9 \times 23 = 3519$ flames.

4.3.1.2 Flame meshing

To get a well resolved database in the Y_c direction, the number of mesh points should be large enough for each flame, especially in the flame zone. Moreover, the spatial interpolation scheme used in REGATH is based on first-order derivatives, so having a large number of points is even more essential. In practice, mesh cells smaller than one micrometer are required in REGATH, when cells from 1 to 50 micrometers, depending on the pressure and the fuel, are sufficient to get the same level of accuracy in SiTCom-B. Since the flame width decreases when the pressure increases, the flame

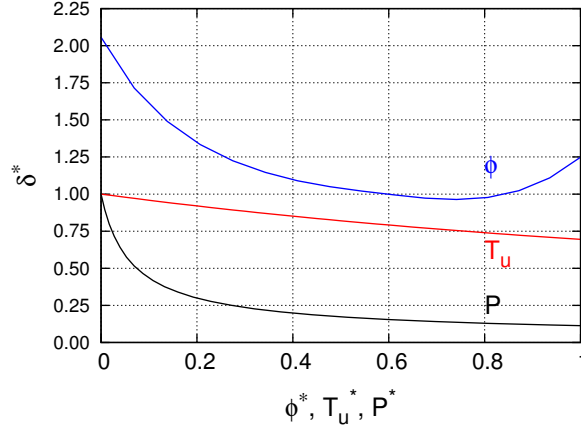


Figure 4.16 – Reduced flame thickness $\delta^* = \delta/\delta(\phi = 1, T_u = 300 \text{ K}, P = 1 \text{ bar})$ in methane flames, versus a reduced equivalence ratio $\phi^* = (\phi - \phi_L)/(\phi_R - \phi_L)$, fresh gas temperature $T_u^* = (T_u - T_{\min})/(T_{\max} - T_{\min})$, and pressure $P^* = (P - P_{\min})/(P_{\max} - P_{\min})$.

must be remeshed during the building process. The influence of the pressure on the flame width is more significant than the influence of the equivalence ratio or the fresh gas temperature (Fig. 4.16). At 20 bar it is indeed 10 times smaller than at 1 bar. Then, the mesh is left unchanged when the equivalence ratio or the fresh gas temperature varies, but it is updated with more points when the pressure increases. It is built at $\phi = 1$, because the thinnest flames are met for stoichiometric conditions.

The remeshing operation is performed by the built-in meshing tool of REGATH. The user has to set three main input parameters : the maximum growing ratio for the spacing between two points, and two other parameters, that determine the resolution of the zones where large values of the spatial first and second derivatives are met (in other words, zones where the variables of the flow feature high gradients or high curvatures). Those three parameters determine the total number of points in the mesh. They have been tuned until the atom conservation is checked and the flame speed does not change. The user must specify the size of the domain as well.

4.3.2 Choice of the tabulated species

4.3.2.1 Mathematical criteria

A simple criterion is used to perform the splitting of the species. The reactants and the products, defined as the species featuring a non-zero mass fraction in the fresh and burnt gases respectively, are transported. They are gathered in the set M . The rest of the species are the intermediate radical species, exclusively produced and consumed in the flame front. Thus, by definition, such species vanish in the fresh and burnt gases. They are included in the set m . Mathematically, this criterion is expressed as follows, and is used by the table generator :

$$\begin{cases} k \in m & \text{if } \forall S \in \Omega_S, \begin{cases} Y_k(0) < \varepsilon \\ Y_k(Y_{c,eq}(S)) < \varepsilon \\ Y_k(Y_{c,eq}(S)) < \varepsilon' Y_k^{\max}(S) \end{cases} \\ k \in M & \text{else} \end{cases} \quad (4.11)$$

where $\varepsilon, \varepsilon' \in \mathbb{R}$. The progress variable Y_c has been used to locate the fresh gas ($Y_c = 0$), the burnt gas ($Y_c = Y_{c,eq}$) and the flame ($Y_c \in]0, Y_{c,eq}[$) areas. The reactants are included in M because of the first condition $Y_k(0) < \varepsilon$, while the products are set in M because of the second condition $Y_k(Y_{c,eq}(S)) < \varepsilon$.

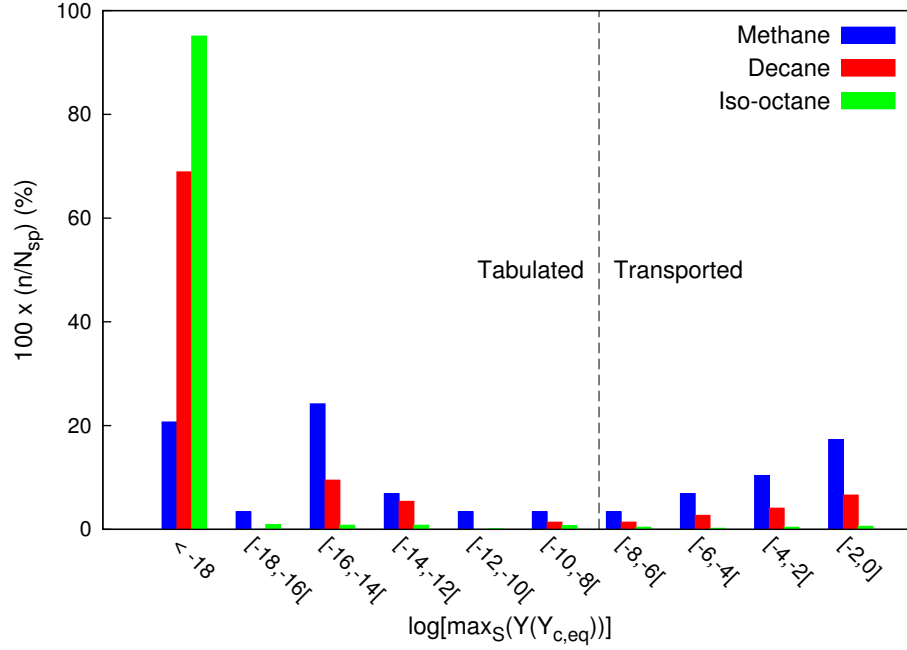


Figure 4.17 – Distribution of species maximum mass fraction in burnt gases for methane/air, decane/air and iso-octane/air flames for several $S \in \Omega_S$. All the species of the kinetic mechanisms are taken into account. n is the number of species in each interval.

Here, a non-zero positive real parameter ε is added, because in practice, the mass fraction of some radical species is not exactly zero in the burnt gases. They are produced in the flame area, but not totally consumed, and some traces are transported in the burnt gases. Moreover, the tabulated species in the frame of HTTC are the species that are only present in the flame. The third criterion $Y_k(Y_{c,eq}(S)) < \varepsilon' Y_k^{\max}(S)$ is added to ensure that this condition is checked. It means that a radical species only present in the burnt gases would actually be transported, and not stored in the table. The parameter ε' is set to $\varepsilon' = 0.01$.

The number of tabulated species thus mainly depends on the choice of ε by the user. To assess the impact of the value of this parameter, the variable $\max_{S \in \Omega_S} Y_k(Y_{c,eq}(S))$ has been calculated for every species $k \in [1, N_{sp}]$ of the three studied kinetic mechanisms. The value of this variable is distributed on discrete intervals. The number of species in each interval is then plotted on Fig. 4.17, as a percentage of the total number of species in the mechanism. With $\varepsilon = 10^{-8}$, the set M are nearly identical for the three mechanisms, except that the fuel is of course specific to each of them (Tab. 4.4). This value is used for all the tables in this work. The number of transported species N_M is between 13 and 15 (NOx are not included), which is totally acceptable and compatible with computing resources which are available today. Besides it means that, with HTTC, the simulation cost dedicated to the species transport is identical whatever the kinetic mechanism considered.

4.3.2.2 The particular case of NOx

When NOx species are included in the mechanisms for the methane and the kerosene, 13 and 12 additional species, respectively, should be transported (Tab. 4.4), according to the criteria defined in Eq. (4.11). Among those species, NO, NO₂ and N₂O are usually the main NOx species of interest when designing a system (engine, furnace, etc), while all the other species are radical species and/or species with very low concentrations in the burnt gases. The type 3 species, such as CN, which are radical only present in the flame front, are the only tabulated NOx species.

Methane	O ₂	N ₂	CO ₂	CO	H ₂ O	H ₂	OH
Lindstedt <i>et al.</i>	O	H	HO ₂	HCO	CH ₂ O		
	CH ₄						
	N	NO	NO ₂	N ₂ O	NH	NH ₂	NH ₃
	NNH	HNO	HCN	HNCO	HOCN	NCO	
Kerosene	O ₂	N ₂	CO ₂	CO	H ₂ O	H ₂	OH
Luche <i>et al.</i>	O	H	HO ₂	HCO	CH ₂ O		
	NC ₁₀ H ₂₂	PHC ₃ H ₇	CYC ₉ H ₁₈				
	N	NO	NO ₂	N ₂ O	NH	NH ₂	NH ₃
	NNH	HNO	HCN	HNCO	HONO		
Iso-octane	O ₂	N ₂	CO ₂	CO	H ₂ O	H ₂	OH
Curran <i>et al.</i>	O	H	HO ₂	HCO	CH ₂ O	H ₂ O ₂	
	IC ₈ H ₁₈						

Table 4.4 – Transported species for the whole flame databases Ω_S , according to criteria set in Eq. (4.11), for every kinetic mechanism used in this study. The green species are fuel components. The red ones are the NOx species (the mechanism for the iso-octane does not include any NOx species).

If all these species are actually transported, an increase of the global simulation cost is expected, because of the overhead to solve for these additional species, and because of a potential requirement for a timestep decrease due to the radical species. In section 4.4, the criteria used to choose transported species is bypassed for the NOx species, to manually force them to be tabulated along the other species only present in the flame, and to remove the overhead related to the NOx species. In this case, the progress variable must be adapted, as discussed in the next section below. Moreover, the raw profiles $Y_k(Y_c, S), \forall S \in \Omega_S$ have to be stored in the HTTC table, since no method to get self-similar profiles has been implemented for the NOx species.

4.3.3 Choice of the control parameters

When using tabulated combustion methods, the definition of the control parameters, needed to access the table, is a crucial point. In the frame of HTTC, the control variables are the progress variable Y_c and a set of “unburnt” conditions $S = (\phi, P, T_u)$, containing the equivalence ratio ϕ , the pressure P and the temperature T_u in the fresh gases of the tabulated flames. In practice, the equivalence ratio ϕ is replaced by a mixture fraction Z_u in the unburnt gases, because it is easier to get a local evaluation of its value anywhere in the flow. This section discusses the methods used to calculate these control parameters.

A noteworthy point is that the HTTC tabulation is less sensitive to the definition of Y_c regarding the monotonic increase of $Y_c(x)$ in the physical space. Non-monotonic progress variables usually happen for rich flames. In such cases, for values of Y_c very close to its equilibrium value, the uniqueness of the tabulated variables cannot be ensured. In the case of FPI, the consequences may be unexpected values of the temperature or the product mass fractions in the burnt gases. With HTTC though, the mass fraction of the tabulated species is zero when the equilibrium is reached (Fig. 4.18), even for rich flames, so a non-monotonic Y_c would lead to very small errors on their values when accessing the table. Moreover, unlike FPI, the temperature calculation mainly depends on the transported species. The monotonic evolution of $Y_c(x)$ has yet been checked during the table generation process. The

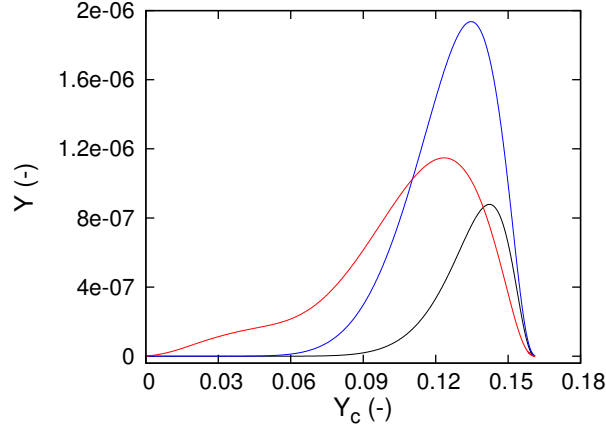


Figure 4.18 – Mass fraction of three radical species in a rich methane flame ($\phi = 1.4$), versus the progress variable $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$, at $P = 1$ bar and $T_u = 300$ K. — CH , — CH_2 , — CH_2OH .

basic definition $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ is used for all the mechanisms, when NOx formation is disabled. In chapter 5, the definition $Y_c = 1 - Y_{\text{CH}_4} - Y_{\text{O}_2} - Y_{\text{N}_2}$ (in other words, the total mass minus the cumulated sum of the reactants), has also been used for methane/air flames.

When NOx formation is enabled in the kinetic mechanisms, Y_c must not be based on species with constant mass fractions in the burnt gases, because many reactions involving NOx take place in the burnt gases. Then, the definitions $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ and $Y_c = 1 - Y_{\text{CH}_4} - Y_{\text{O}_2} - Y_{\text{N}_2}$ are not adapted to the tabulation of NOx [77]. Instead, $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2} + Y_{\text{NO}} + Y_{\text{NO}_2} + Y_{\text{N}_2\text{O}}$ is used. With this definition, both the evolutions of the radical species in the flame front and of the species that contain nitrogen in the burnt gases are caught.

However, the equilibrium value of the NOx part of Y_c , denoted $Y_{c,2} = Y_{\text{NO}} + Y_{\text{NO}_2} + Y_{\text{N}_2\text{O}}$, is very small compared to the equilibrium value of $Y_{c,1} = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$. As a consequence, the derivative $\partial Y_k / \partial Y_c$ is very large in the burnt gases (Fig. 4.19(a)), so the accuracy of the NOx mass fractions read in the table is strongly degraded. In order to balance the weight of the terms $Y_{c,1}$ and $Y_{c,2}$ in the calculation of Y_c , a parameter α is added, so that Y_c is now computed as $Y_c = Y_{c,1} + \alpha Y_{c,2}$. The parameter α is computed as the ratio of $Y_{c,1}$ and $Y_{c,2}$ at the equilibrium :

$$\alpha(S) = \frac{Y_{c,1}^{eq}(S)}{Y_{c,2}^{eq}(S)} \quad (4.12)$$

It is plotted versus the equivalence ratio on Fig. 4.20. Its value varies on several order of magnitude depending on the value of S , and thus cannot have a unique value. The impact of the value of α is assessed in section 4.4.

The mixture fraction is computed with the Bilger's formula (Eq. (2.11)). The temperature T_u will be equal to the inlet fresh gas temperature.

4.3.4 Prolongation of the table out of the flammability limits

So far, flame databases have been generated for a small range of equivalence ratio ϕ between the flammability limits of premixed flames (i.e. $\phi \in [0.6, 1.4]$ in this work). For cases where chemical reactions take place on a wider range of ϕ (typically in triple flames), those databases need to be completed or prolonged. Moreover, figure 4.21 shows the mass fraction of several radical species in methane/air flames extracted from the 1D premixed database, in a (Y_c, ϕ) space. For all these species, the mass fractions are not equal to zero at the rich boundary (line defined by $\phi = 1.4$), which confirms

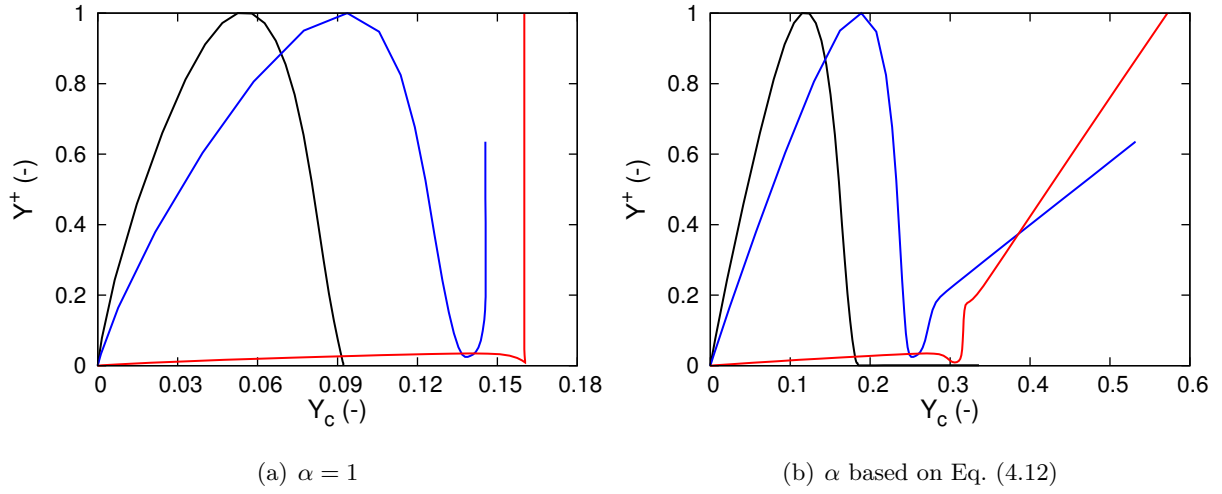


Figure 4.19 – Reduced mass fraction of NH_3 versus the progress variable $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2} + \alpha(Y_{\text{NO}} + Y_{\text{NO}_2} + Y_{\text{N}_2\text{O}})$ in 1D methane/air flames, at $P = 1$ bar and $T_u = 300$ K. — $\phi = 0.6$, — $\phi = 1.0$, — $\phi = 1.4$.

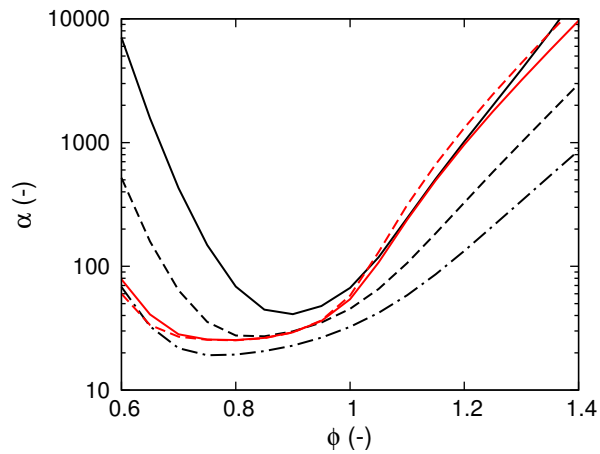


Figure 4.20 – Parameter α (Eq. (4.12)) in methane flames, versus the equivalence ratio ϕ , for several values of $P \in [1, 20]$ bar and $T_u \in [300, 700]$ K.

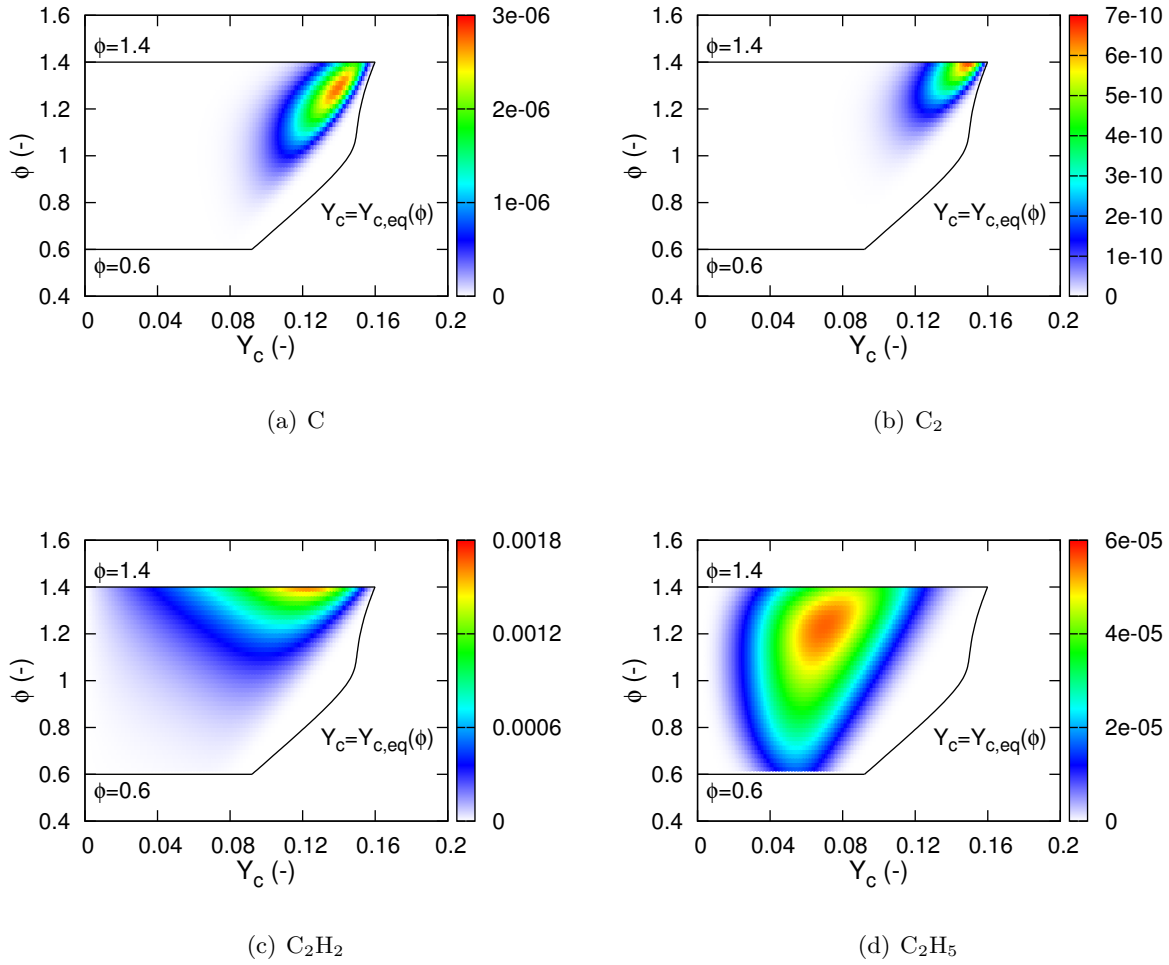


Figure 4.21 – Species mass fraction of a few radical species in the original 1D methane flame database ($\phi \in [0.6, 1.4]$), as a function of the progress variable and the equivalence ratio.

that the table needs a prolongation if values of ϕ out of the flammability range of premixed flames are met in the simulation, especially on the rich side. Most of the radical species fade to zero before the lean boundary is reached, but some of them do not (e.g. C_2H_5). A prolongation of the table on the lean side will then be needed as well.

To overcome this issue, some authors chose to store diffusion flamelets [26, 224], or to build a table based on the combination of both premixed and diffusion flamelets [172, 92]. But some (Y_c, Z) points, actually met in triple flames, are still missing, even in such tables. Diffusion tails may be modeled, but extension of flammability limits in the premixed zones may not.

A procedure to get a prolongation of the table out of the flammability limits is proposed here. Table prolongations have already been proposed in the frame of the FPI method [77, 170]. They consist of an extension of all the tabulated variables (temperature, transport coefficients, thermal capacities, species mass fractions, etc.) out of the flammability range. The chemistry is not extended though, since the source term of the progress variable is set to zero. In practice, one of the methods to perform the prolongation consists in using equilibrium computation codes such as EQUIL [142] to compute the equilibrium values of the temperature and the species mass fractions in the burnt gases. The temperature and the mass fractions are then linearly interpolated between the fresh and burnt gas states, and used to compute all the other variables to be tabulated (see section 3.4.3.3). Such a

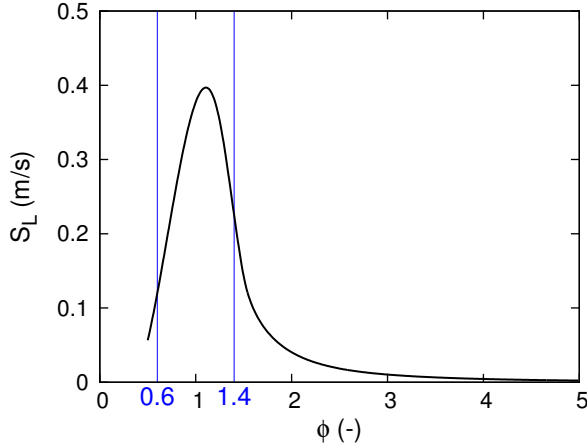


Figure 4.22 – Laminar flame speed S_L versus equivalence ratio ϕ , in 1D methane/air flames computed with REGATH.

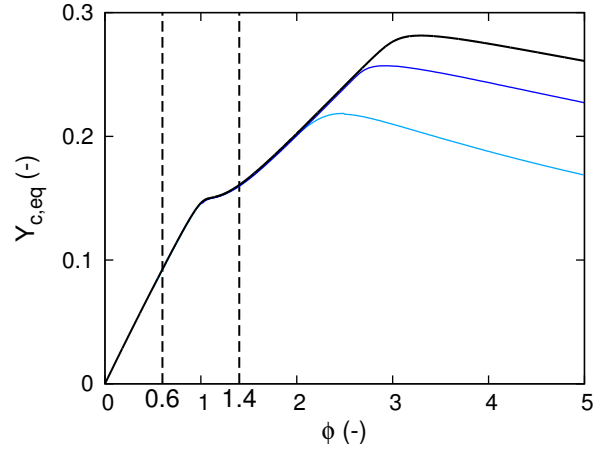


Figure 4.23 – Equilibrium value of the progress variable versus equivalence ratio ϕ , in methane/air flames. — value from EQUIL, — value of Y_c in the burnt gases of 1D flames computed with REGATH, with 10 km-long mesh, — idem with 1000 km-long mesh.

method cannot be transposed for HTTC though, since the tabulated species mass fractions are zero both in the fresh gases and in the burnt gases, at equilibrium.

Two prolongation approaches are proposed here, and are described in the next subsections. The first one consists in using extended 1D flames databases, generated on a wider range of ϕ . With the second approach, the tabulated species mass fractions are extrapolated out of the flammability range, by using models. For the sake of clarity, table prolongations will only be explained for a methane database without NOx species, with constant fresh gas temperature and pressure ($P = 1$ bar and $T_u = 300$ K).

4.3.4.1 Computation of 1D flames outside the flammability limits

The first table extension methods consists in generating additional flames out of the flammability limits, using the 1D flame solver REGATH. Even if it has been shown in experiments that premixed flames cannot propagate beyond these limits, REGATH is still able to provide data to extend the table. The equivalence ratio range has been augmented from $[0.6, 1.4]$ to $[0.5, 5]$. For large values of the equivalence ratio, the results given by the 1D flame solver do not make any physical sense. Indeed for $\phi > 2.5$, the flame front propagates at velocities smaller than 1 cm/s (Fig. 4.22), and is very wide, and the 10 meter-long domains used to generate the database (or even larger computation domains) are not sufficient to reach equilibrium values given by EQUIL for the progress variable (Fig. 4.23).

The extended HTTC table on $\phi \in [0.5, 5]$ with the 1D flame solver is displayed on Fig. 4.24 for a few species. For most of the tabulated species, their mass fraction reaches zero for values of the progress variable smaller than the equilibrium value. Moreover, for $\phi > 2$, these species have a negligible mass fraction, whatever the value of Y_c , so the part of the flame database for high values of ϕ is not used. A few minor species are still present at high equivalence ratios with a large mass fraction (e.g. C_2H_2). For these high values of ϕ , the equilibrium value of Y_c is not reached at the end of the computation domain, so a part of the table is missing for these species. Besides, their mass fractions at the rich ϕ boundary of the table are not zero, which suggests that they should be transported instead of being tabulated. Consequently, when using this extended table, 7 species (C_2H_2 , C_2H_3 , C_2H_4 , C_2H_5 , C_2H_6 ,

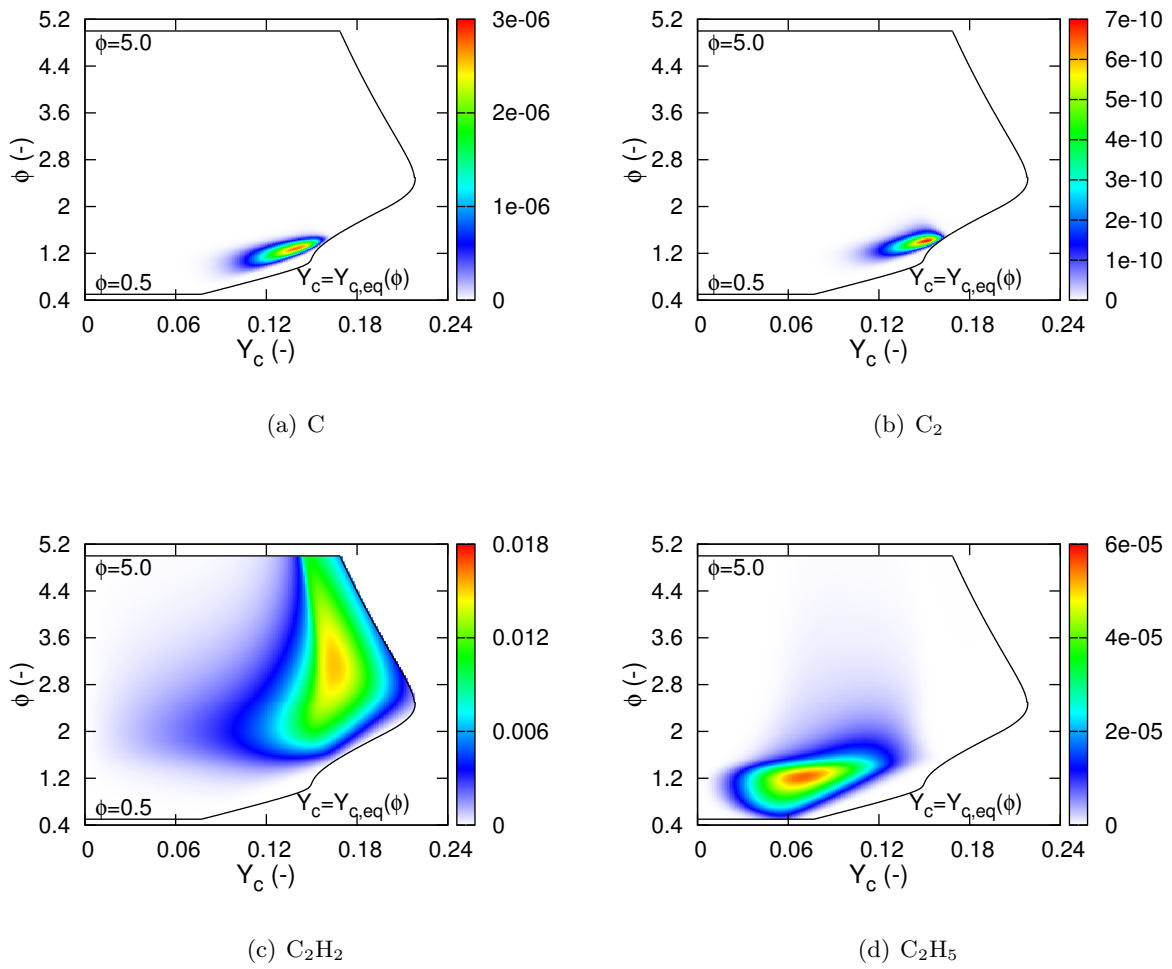


Figure 4.24 – Species mass fraction of a few radical species in the extended 1D methane/air flame database ($\phi \in [0.5, 5.0]$), as a function of the progress variable and the equivalence ratio.

CH_2CO , CH_3) are added to the set M of the transported species ($N_M = 20$).

4.3.4.2 Extrapolation of the 1D premixed flames

The second prolongation method is an extrapolation of the database $Y_k(Y_c, \phi)$, $k \in m$, $\phi \in [0.6, 1.4]$ out of the flammability range. Then, when $\phi \in [0.6, 1.4]$, the mass fractions provided by the 1D premixed flame database are still used, but when $\phi < 0.6$ or $\phi > 1.4$, an extrapolation model is used to fill the missing parts of the table.

For this approach, two sub-models have been considered :

1. For each $Y_c \in [0, Y_{c,eq}(Z)]$, the shape of the profile $Y_k(Z)$ is analyzed to find an analytical function that properly fits the profile for $Z \in [Z_L, Z_R]$. This function is used to extrapolate the profile for $Z \in [0, Z_L] \cup [Z_R, 1]$. The reduction parameters $Y^{\max}(Z)$, $Y_c^A(Z)$ and $Y_c^B(Z)$ are then computed for the whole extrapolated database ($Z \in [0, 1]$).
2. The reduction parameters $Y^{\max}(Z)$, $Y_c^A(Z)$ and $Y_c^B(Z)$ are computed for the 1D premixed flame database ($Z \in [Z_L, Z_R]$). The shape of the curves $Y^{\max}(Z)$, $Y_c^A(Z)$ and $Y_c^B(Z)$ is then analyzed to find an analytical function that properly fits them. This function is used to calculate the reduction parameters for $Z \in [0, Z_L] \cup [Z_R, 1]$, and then the mass fractions of the tabulated species.

Note that both of these approaches are models, and the choice of one of those models among the others is not a priori justified. The sensitivity of the results to the table extension model is investigated in the next chapter. Those two methods are described now.

Sub-model 1

The curves $Y_k(Z)$ have a similar shape for every $k \in m$, whatever the value of Y_c . They increase from the point $(Z = 0, Y_k = 0)$ to a point $(Z_k^{\max'}(Y_c), Y_k^{\max'}(Y_c))$, where :

$$Y_k^{\max'}(Y_c) = \max_{Z \in [0,1]} Y_k(Y_c, Z) = Y_k(Z_k^{\max'}(Y_c)) \quad (4.13)$$

The superscript $\max'$ is used here to avoid any confusion with the reduction parameter $Y_k^{\max}(Z) = \max_{Y_c \in [0, Y_{c,eq}(Z)]} Y_k(Y_c, Z)$. Then, they decrease again to $(Z = 1, Y_k = 0)$. Thus, the extrapolation function proposed here is based on gaussian exponential functions. It is designed so that it exactly matches three given points : $(Z_L, Y_{L,k}(Y_c))$, $(Z_k^{\max'}(Y_c), Y_k^{\max'}(Y_c))$ and $(Z_R, Y_{R,k}(Y_c))$, with $Y_{L,k} = Y_k(Y_c, Z_L)$ and $Y_{R,k} = Y_k(Y_c, Z_R)$. Since the curves $Y_k(Z)$ are not symmetrical, two coefficients A_L and A_R are used on the lean and the rich side, respectively, to get a well matching fitting function :

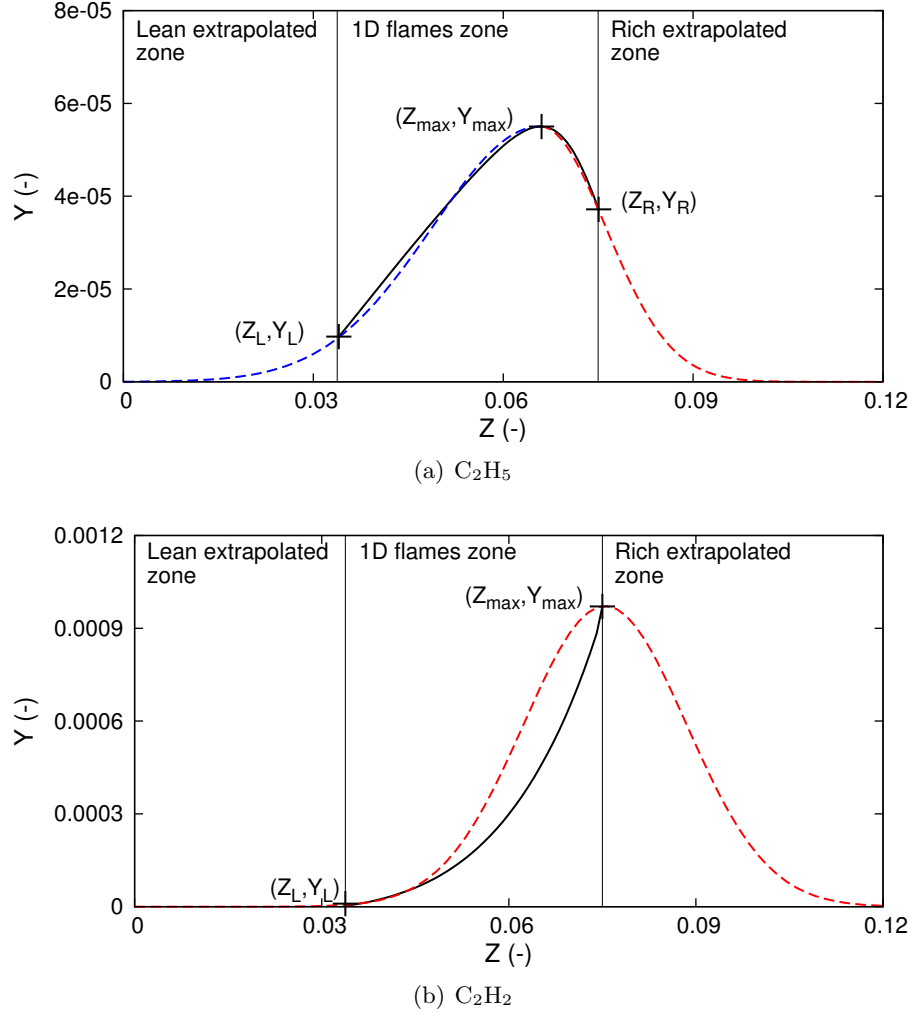
$$\begin{cases} Y_k(Y_c, Z) = Y_k^{\max'}(Y_c) \exp\left[A_{L,k}(Y_c)(Z - Z_k^{\max'}(Y_c))^2\right], \forall Z \in [0, Z_L] \\ Y_k(Y_c, Z) = Y_k^{\max'}(Y_c) \exp\left[A_{R,k}(Y_c)(Z - Z_k^{\max'}(Y_c))^2\right], \forall Z \in [Z_R, 1] \end{cases} \quad (4.14)$$

where

$$A_{L,k}(Y_c) = -\frac{\log\left(Y_{L,k}(Y_c)/Y_k^{\max'}(Y_c)\right)}{(Z_L - Z_k^{\max'}(Y_c))^2} \quad (4.15)$$

and

$$A_{R,k}(Y_c) = \begin{cases} -\frac{\log\left(Y_{R,k}(Y_c)/Y_k^{\max'}(Y_c)\right)}{(Z_R - Z_k^{\max'}(Y_c))^2} & \text{if } Z_k^{\max'}(Y_c) < Z_R \\ A_{L,k}(Y_c) & \text{if } Z_k^{\max'}(Y_c) = Z_R \end{cases} \quad (4.16)$$

Figure 4.25 – Extrapolation of $Y(Z)$ profiles

Fitted profiles are displayed on figure 4.25. If $Y_L = 0$ or $Y_R = 0$, the extrapolation process is not needed on the lean side or the rich side, respectively, and the fitting function is set to zero. For a few species (e.g. C_2H_2), and for some Y_c values, $Z_k^{\max}(Y_c) = Z_R$ and $(\partial Y_k / \partial Z)(Z_R) \neq 0$, so it is impossible to predict the location and the value of the maximum of such $Y_k(Z)$ profiles, since they monotonically increase along Z . In this case, the exponential fit may not be well adapted, but is still used, to keep the extrapolation process as simple as possible. The fitting coefficients are calculated on the lean side (i.e. for $Z < Z_L$), and symmetrically duplicated on the rich side.

With this 1D extrapolation approach, $Y_k(Z)$ profiles are independently treated for each value of Y_c . It means that, for a given value of Z , reconstructed $Y_k(Y_c)$ profiles in the extrapolated zone may not be continuous, which is expected to be harmful for the table generator, especially during the self-similarity step. The profiles $Y_k(Y_c)$ are then smoothed by filtering the coefficients $A_{L,k}$ and $A_{R,k}$. Any filter could be used, but a simple average using the two left and right neighbors is used :

$$A_{L,k}^{i*} = \frac{A_{L,k}^{i-2} + A_{L,k}^{i-1} + A_{L,k}^i + A_{L,k}^{i+1} + A_{L,k}^{i+2}}{5} \quad (4.17)$$

where $A_{L,k}^{i*}$ is the smoothed value of $A_{L,k}$ at the discrete value of Y_c with the index i . The extrapolated table with this first sub-method is plotted on figure 4.26, for a few species. Unlike the previous prolongation method, the choice of the transported species is not modified by the prolongation process.

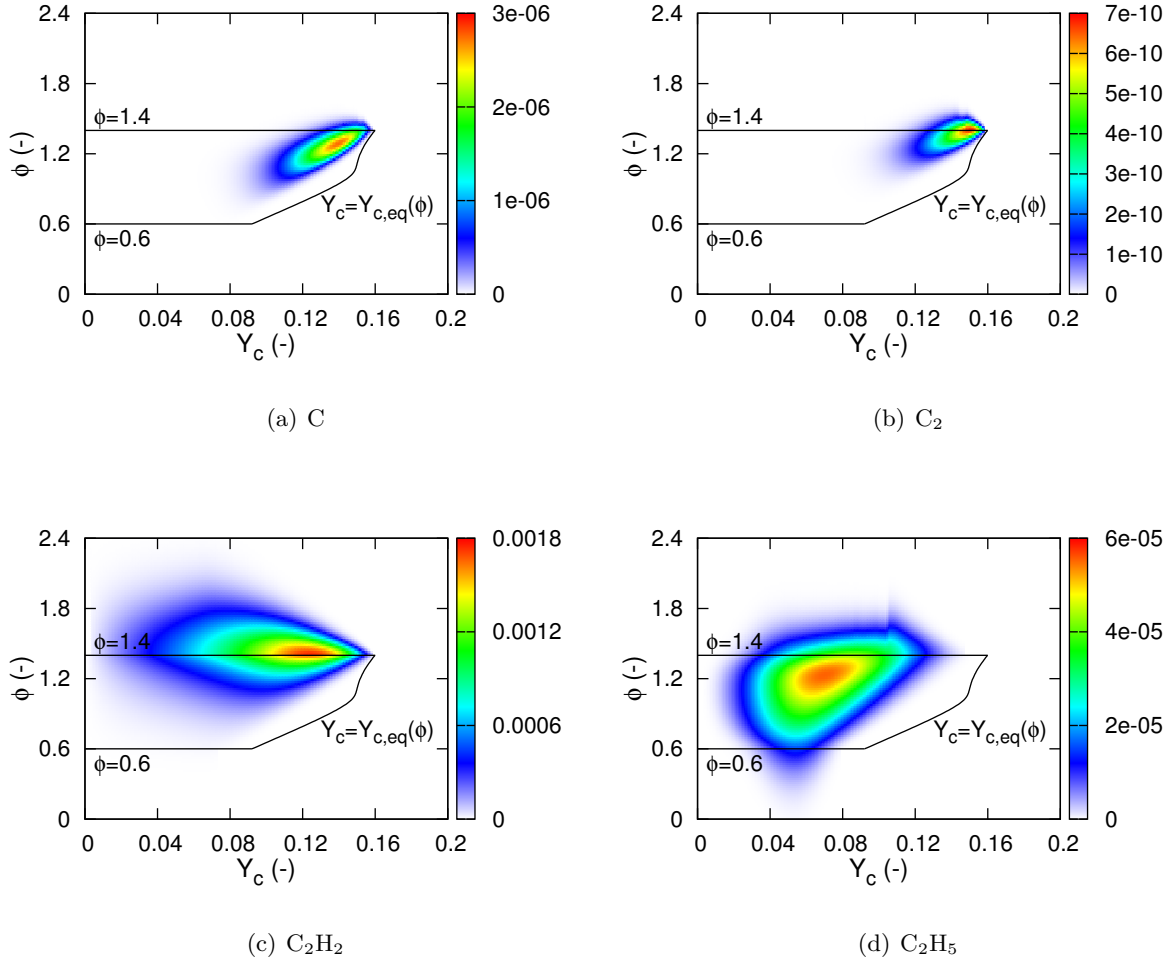


Figure 4.26 – Species mass fraction of a few radical species in the extrapolated 1D methane/air flame database, as a function of the progress variable and the equivalence ratio. The $Y(Z)$ profiles are extrapolated in areas where $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$.

The transported species are gathered in Tab. 4.4. Finally, the reduced profiles $Y_k^+(Y_{c,k}^+)$ and the reduction parameters $Y_k^{\max}(Z)$, $Y_{c,k}^A(Z)$ and $Y_{c,k}^B(Z)$, can be calculated (see section 4.1.1).

Sub-model 2

The second extrapolation sub-model is now presented. The reduction parameters $Y_k^{\max}(Z)$, $Y_{c,k}^A(Z)$ and $Y_{c,k}^B(Z)$, with $Z \in [Z_L, Z_R]$ are first computed, for every $k \in m$. They are then extrapolated using an approach similar to what has been presented above. The parameter $Y_k^{\max}$ is fitted as follows :

$$\begin{cases} Y_k^{\max}(Z) = \max_{Z \in [Z_L, Z_R]} (Y_k^{\max}) \exp[B_{L,k}(Z - Z_k^{\max})^2], \forall Z \in [0, Z_L] \\ Y_k^{\max}(Z) = \max_{Z \in [Z_L, Z_R]} (Y_k^{\max}) \exp[B_{R,k}(Z - Z_k^{\max})^2], \forall Z \in [Z_R, 1] \end{cases} \quad (4.18)$$

where $Z_k^{\max}$ is defined as :

$$Y_k^{\max}(Z_k^{\max}) = \max_{Z \in [Z_L, Z_R]} (Y_k^{\max}) \quad (4.19)$$

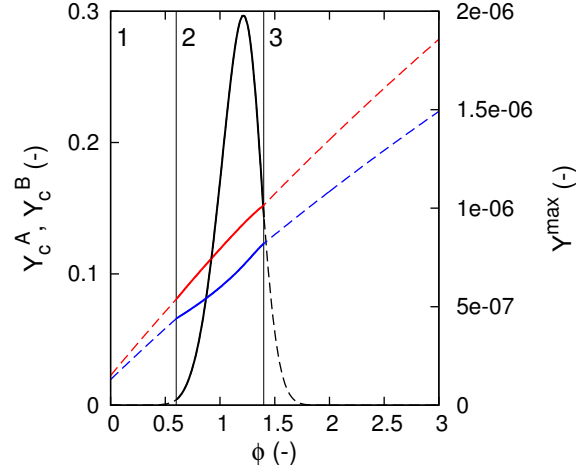


Figure 4.27 – Extrapolation of the reduction parameters for species CH. Solid lines : values computed using the flame database on the flammability range. Dashed lines : extrapolated values. Black : $Y^{\max}$, blue : Y_c^A , red : Y_c^B . Zone 1 : lean extrapolated zone. Zone 2 : flammability range. Zone 3 : rich extrapolated zone.

$$B_{R,k} = \begin{cases} -\frac{\log(Y_k^{\max}(Z_R)/Y_k^{\max}(Z_k^{\max}))}{(Z_R - Z_k^{\max})^2} & \text{if } Z_k^{\max} < Z_R \\ B_{L,k} & \text{if } Z_k^{\max} = Z_R \end{cases} \quad (4.20)$$

The parameters Y_c^A and Y_c^B have a shape more difficult to predict, but most of the time, they increase with Z , because the interval $[0, Y_{c,eq}(Z)]$ widens with Z . They are simply linearly extrapolated, with a slope calculated between Z_L and Z_R :

$$Y_c^A(Z) = Y_c^A(Z_L) + \frac{Y_c^A(Z_R) - Y_c^A(Z_L)}{Z_R - Z_L}(Z - Z_L), \forall Z \in [0, Z_L] \cup [Z_R, 1] \quad (4.21)$$

$$Y_c^B(Z) = Y_c^B(Z_L) + \frac{Y_c^B(Z_R) - Y_c^B(Z_L)}{Z_R - Z_L}(Z - Z_L), \forall Z \in [0, Z_L] \cup [Z_R, 1] \quad (4.22)$$

As an example, the extrapolated reduction parameters are displayed on figure 4.27 for species CH. The reconstructed $Y_k(Y_c, Z)$ maps using the HTTC table extrapolated with this method are displayed for a few species on figure 4.28. In the rich extrapolated zone, the $Y_k(Y_c)$ profiles are extended beyond the equilibrium point $Y_{c,eq}$, for a few species. The impact of this extrapolation error will be assessed in the next chapter.

The different table extension methods are compared on figure 4.29. The $Y_k(Y_c, Z)$ maps are similar for some species, but feature some discrepancies for a few species. In the next chapter, methane triple flames are simulated using the HTTC solver, with tables generated with these different extension methods.

All the extension methods presented here have drawbacks, but the extension of a 1D premixed flame database out of the flammability range imperatively requires the implementation of models. Moreover, the extension procedures described here should be adapted for larger hydrocarbons, to properly extrapolate double-peak mass fraction profiles.

4.3.5 Automated tool for the generation of tables

A full HTTC simulation requires three main stages :

1. The generation of a 1D premixed flame database,

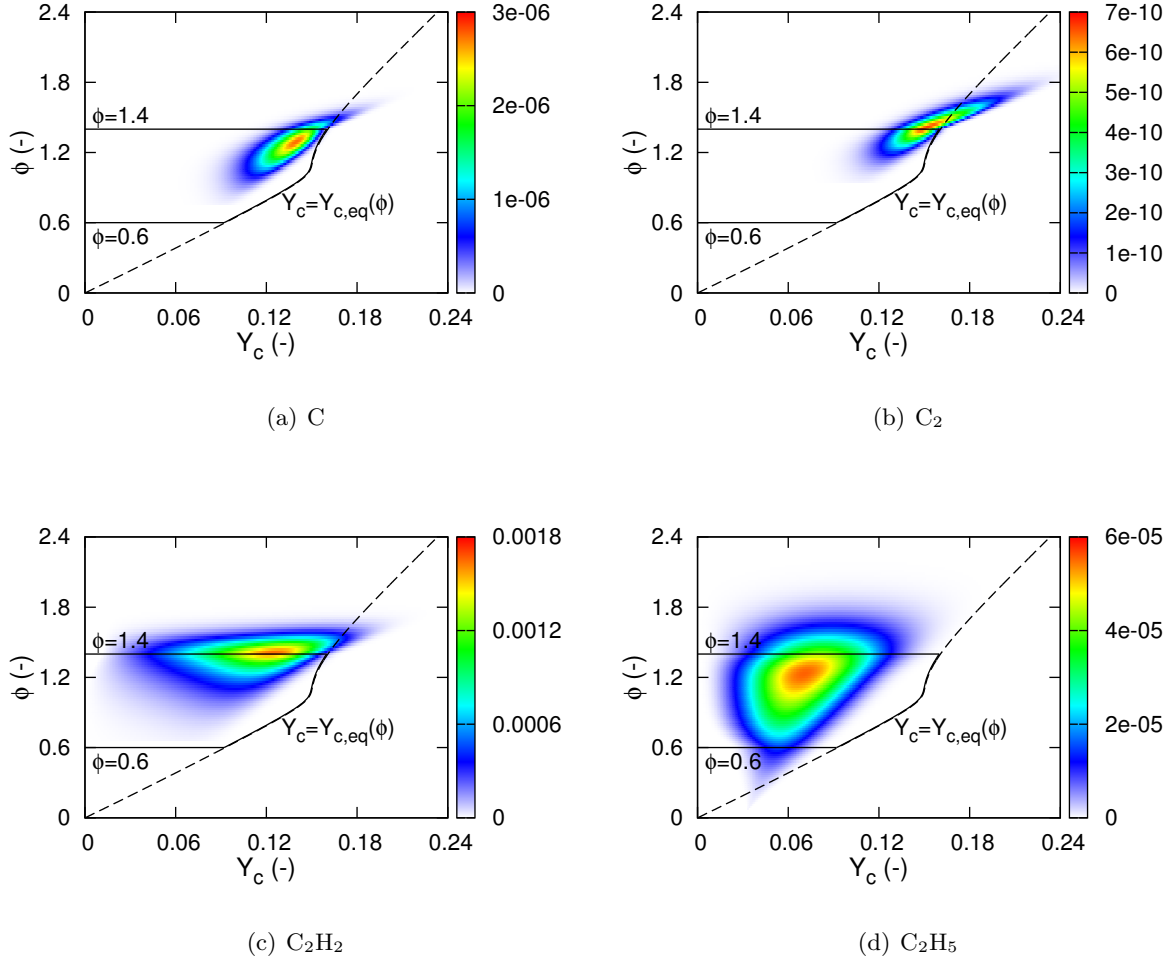


Figure 4.28 – Species mass fraction of a few radical species in the extrapolated 1D methane/air flame database, as a function of the progress variable and the equivalence ratio. The database is extended in areas where $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$, by extrapolating Y_c^A , Y_c^B and Y_c^{max} . The extrapolated zones are reconstructed using the self-similarity. The equilibrium value of Y_c computed in EQUIL is also displayed (---).

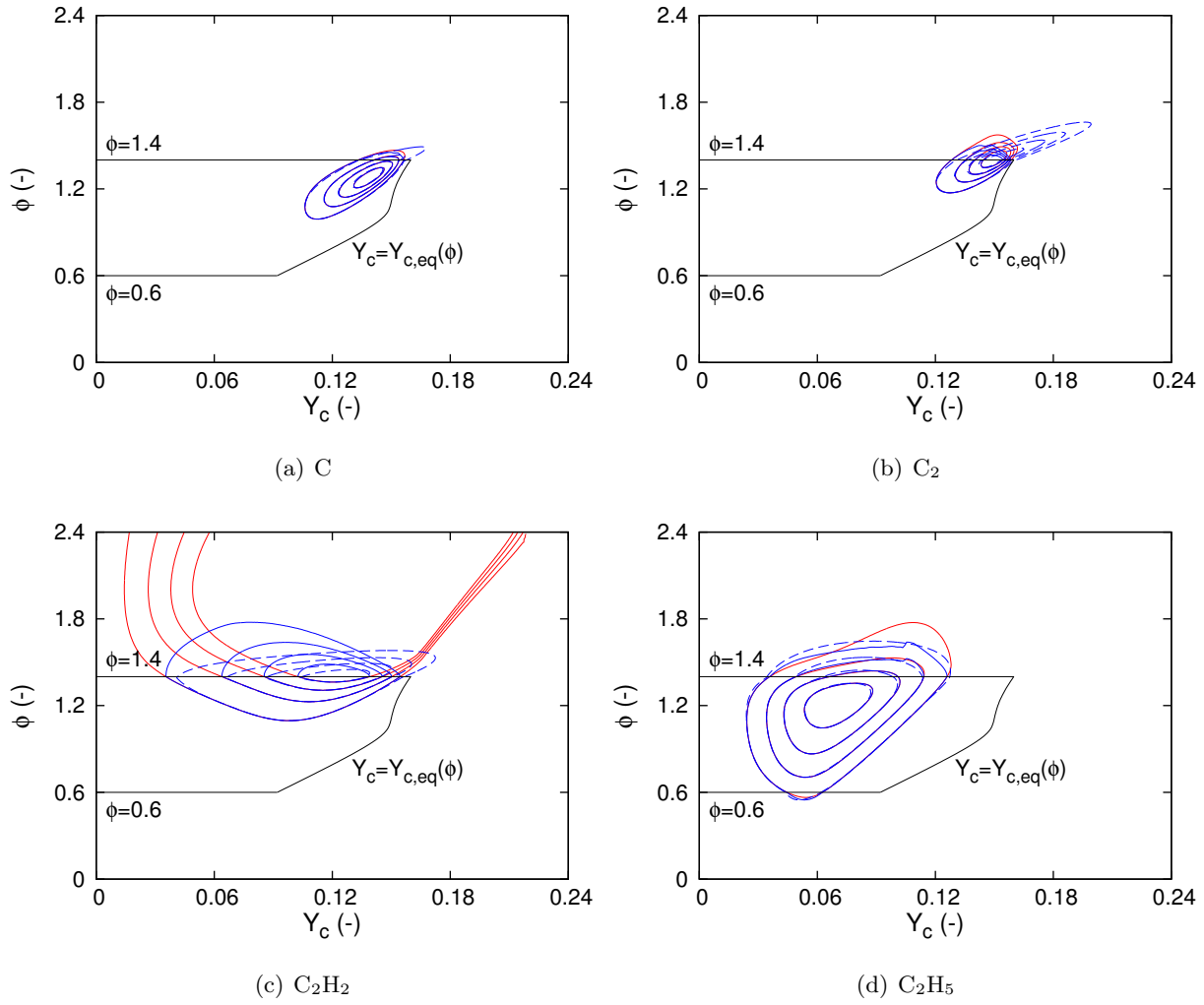


Figure 4.29 – Contours of species mass fractions in 1D methane/air flames in the extended databases, as a function of the progress variable and the equivalence ratio. — 1D database for $\phi \in [0.5, 5.0]$ (C_2H_2 is not tabulated in this case), — extrapolation of $Y(Z)$ profiles, --- extrapolation of Y_c^A , Y_c^B and Y^{max} .

2. The processing of the database to build a HTTC table, required by the HTTC solver,
3. The simulation itself, using the HTTC solver along with the HTTC table generated at step 2.

The first stage has been explained in section 4.3.1, and need to be executed, in principle, one single time only. The principle of the HTTC solver used at step 3 has been detailed in section 4.1, and examples of simulations are provided in the next section (1D flames), and in the next chapter (2D triple flames). This section now focuses on the second stage, which is the generation of the HTTC table.

The table building process is a tedious task, because it involves many steps, such as the choice of the tabulated species, the computation of the control parameters, the shape detection of the profiles, the application of the self-similarity and the extension out of the flammability range. The building process must be as simple as possible for the code users, to save time and avoid error sources. In the frame of this work, many tables have been generated, for debugging and analysis purposes. In this context, a tool has been developed during this thesis, to automatically deal with the table building.

The tool executes five main steps, summarized in Fig. 4.30:

1. Reading and pre-processing of the 1D premixed flame database,
2. Processing of the database to get a “raw” table, without self-similarity nor extension,
3. Computation of the reduced profiles and the reduction parameters, and extension of the table,
4. Writing of the table with the proper format, to make it compatible with the HTTC solver implemented in SiTCom-B,
5. Post-processing of the table, to easily check for unexpected behaviors and errors

This section now explains the building procedure, step by step. For the sake of clarity, the database is supposed to contain one single point in the P and T_u directions.

During the step 1, user-defined parameters are read, namely the definition of the progress variable, the final number of points in the Y_c and Z directions, and the extension method. For debugging purposes, the user can also manually choose the transported and the tabulated species. All the species names and mass fractions are read in the flame database coming from the 1D flame solver REGATH². For each flame, the pressure, the temperature of the fresh gases and the equivalence ratio are read.

During the step 2, the full set of species is split to get the tabulated and the transported species, according to the criteria defined in Eq. (4.11). The shape of the mass fraction profiles of each tabulated species is analyzed, for every $S \in \Omega_S$, to identify the double-peak profiles. The progress variable Y_c is then computed using the coefficients provided by the user. The tool checks that Y_c increases monotonically in the physical space, or return an error message. A uniform mesh is set for Y_c , between zero and the maximum equilibrium value obtained among all $S \in \Omega_S$. The $Y_k(Y_c), k \in m$ profiles are interpolated on this new mesh, which is more convenient for the implementation of the self-similarity and the table extension parts, and gives better performances when the table is read during the simulation, than a table with non-uniform indexing. For the same reason, a uniform mesh is set for the mixture fraction Z , from 0 to 1. For each value of Y_c , the $Y_k(Z), k \in m$ profiles are interpolated on this mesh, for Z included in the flammability range.

The step 3 is optional. For debugging and analysis purposes, the user can chose to independently enable or disable the self-similarity or table extension steps, except if the extrapolation of the reduction parameters is selected. If no table extension method is selected, the tabulated mass fractions are set to zero out of the flammability limits. The arrows in Fig. 4.30 represent the different available options.

2. The flame database could be provided by any solver, on condition that the format of the files is compatible with the reading routine, or that the latter is slightly modified.

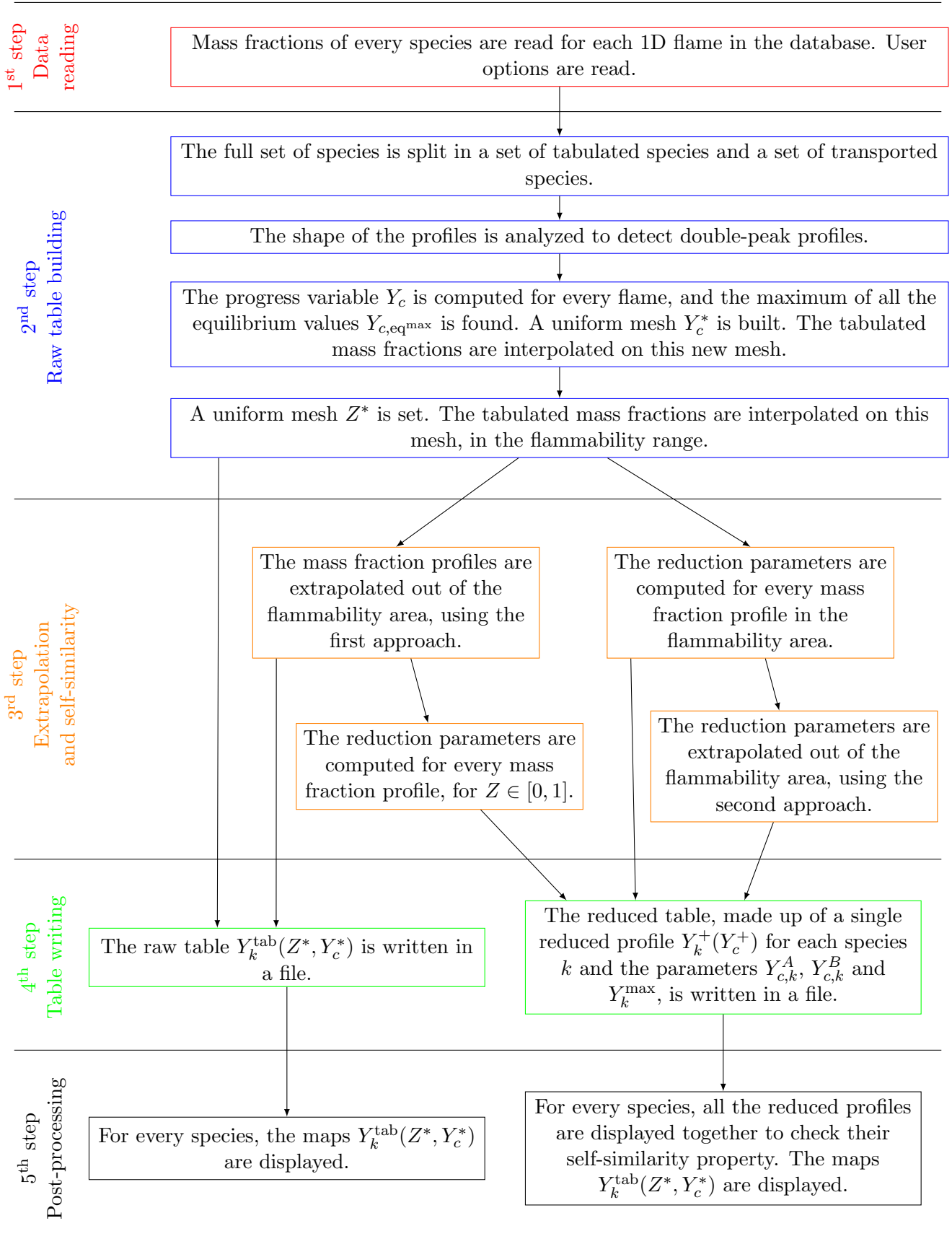


Figure 4.30 – Description of the automated table generation tool, designed for the HTTC solver of SiTCom-B.

During step 4, the tabulated mass fractions are written in a file, along with a copy of the user-defined input parameters of the generation tool. If the self-similarity has not been requested, the “raw” profiles $Y_k(Y_c, Z)$ are stored, else one single reduced profile plus the reduction parameters are stored for each tabulated species. By default, the stoichiometric reduced profile with $P = P_{\min}$ and $T_u = T_{\min}$ is stored.

The step 5 is intended to provide checking and debugging data, such as the maps $Y_k(Y_c, Z)$ for the whole set of species, or the reduction parameters for the tabulated species. For each tabulated species, all the reduced profiles are plotted together to check that they are actually self-similar.

4.4 Simulation of one-dimensional methane and kerosene flames

So far, the principle of the HTTC method has been presented, and the table generation procedure has been explained. The purposes of this section are :

- The validation of the implementation of the HTTC method in the DNS/LES code SiTCom-B, by a comparison with the reference results obtained with the fully transported chemistry solvers of REGATH, and SiTCom-B when possible (FTC solver),
- The presentation of additional corrections needed at run time,
- The assessment of the performance of HTTC, regarding the computational cost.

First, the numerical parameters and inputs of SiTCom-B used for this study are presented. Then, one-dimensional premixed methane and decane flames are computed with HTTC, and compared with fully transported chemistry, regarding the accuracy of the results and the computational cost. In the next subsections, corrections related to self-similarity errors and mass conservation are presented. This section ends with the computation of NOx with HTTC.

4.4.1 Presentation of the study and numerical parameters

The numerical parameters used in this section by the HTTC solver of SiTCom-B are now detailed. A one-dimensional domain is used. It extends from $x_{\min} = -10$ mm to $x_{\max} = 40$ mm. The initial solutions are steady solutions computed with REGATH. Unsteady simulations are run in SiTCom-B until a new steady state is reached. In this section, a simulation is supposed to be steady if the following variables do not vary with time :

- flame speed S_L and burnt gases velocity $U(x_{\max})$,
- flame front location,
- pressure jump accross the flame $P(x_{\max}) - P(x_{\min})$,
- burnt gases temperature $T(x_{\max})$,
- maximum CH mass fraction in the whole domain $\max_{x \in [x_{\min}, x_{\max}]} Y_{\text{CH}}(x)$.

The diffusion term of the species transport equations are calculated with variable Lewis numbers. The optimized version of the routines for the computation of the transport properties and the reaction rates are used.

When the simulations start, the flame front is located at $x = 0$. The inlet velocity $U(x_{\min})$ is set equal to the flame speed S_L (computed using Eq. (3.28)), so that the flame front remains as steady as possible. The mixture fraction is computed at the inlet of the domain, as well as the fresh gas temperature T_u . The NOx formation is disabled in all the kinetic mechanisms, except in section 4.4.5.

To get optimized simulation durations, small cells are used in the reactive zone, while larger cells are used far from the flame front. The cell size is constant in the flame zone, in the fresh gases and in the burnt gases. Between these zones, the cell size is increased by 5% between two adjacent cells.

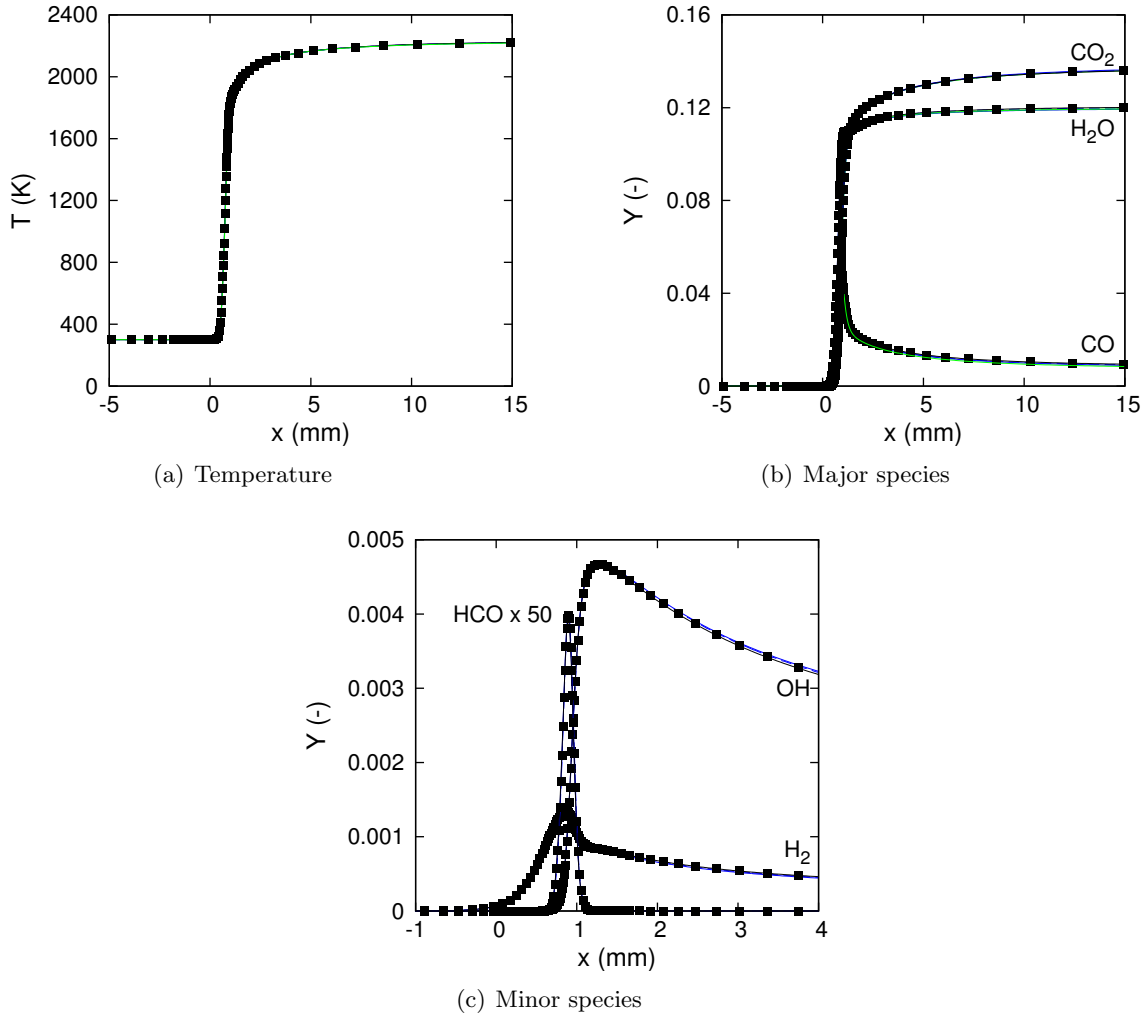


Figure 4.31 – One-dimensional methane-air flame at $\phi = 1$ ($T_u = 300$ K and $P_u = 1$ bar). Squares : reference computed with REGATH. Lines : results from SiTCom-B using different solvers (black solid : FTC, blue solid : HTTC, blue dashed : fast HTTC, green solid : FPI). OH and H_2 are not available with the FPI solver.

The cell size in the fresh and the burnt gases is set to 200 μm . The size in the flame front has been properly set thanks to a mesh sensitivity study, detailed in Appendix A.

4.4.2 Computation of stoichiometric flames

4.4.2.1 Validation towards fully-detailed chemistry

The solver HTTC implemented in SiTCom-B has been used to compute methane and decane stoichiometric flames. Both the standard and the fast version have been tested. The results are compared with the detailed chemistry solver of REGATH, and the FPI solver of SiTCom-B. For the methane flames, the FTC solver of SiTCom-B is used as well. The results are displayed on Fig. 4.31 and 4.32, for $P = 1$ bar, and $T_u = 300$ K for the methane flame and $T_u = 500$ K for the decane flame, respectively. A very good agreement is achieved between all the different solvers, for the temperature, and both the minor and the major species. The mass fractions of OH, HCO and H_2 have not been stored in the FPI tables, and therefore are not available with this solver. For HTTC, such results were expected, since the equivalence ratio, the temperature and the pressure values match

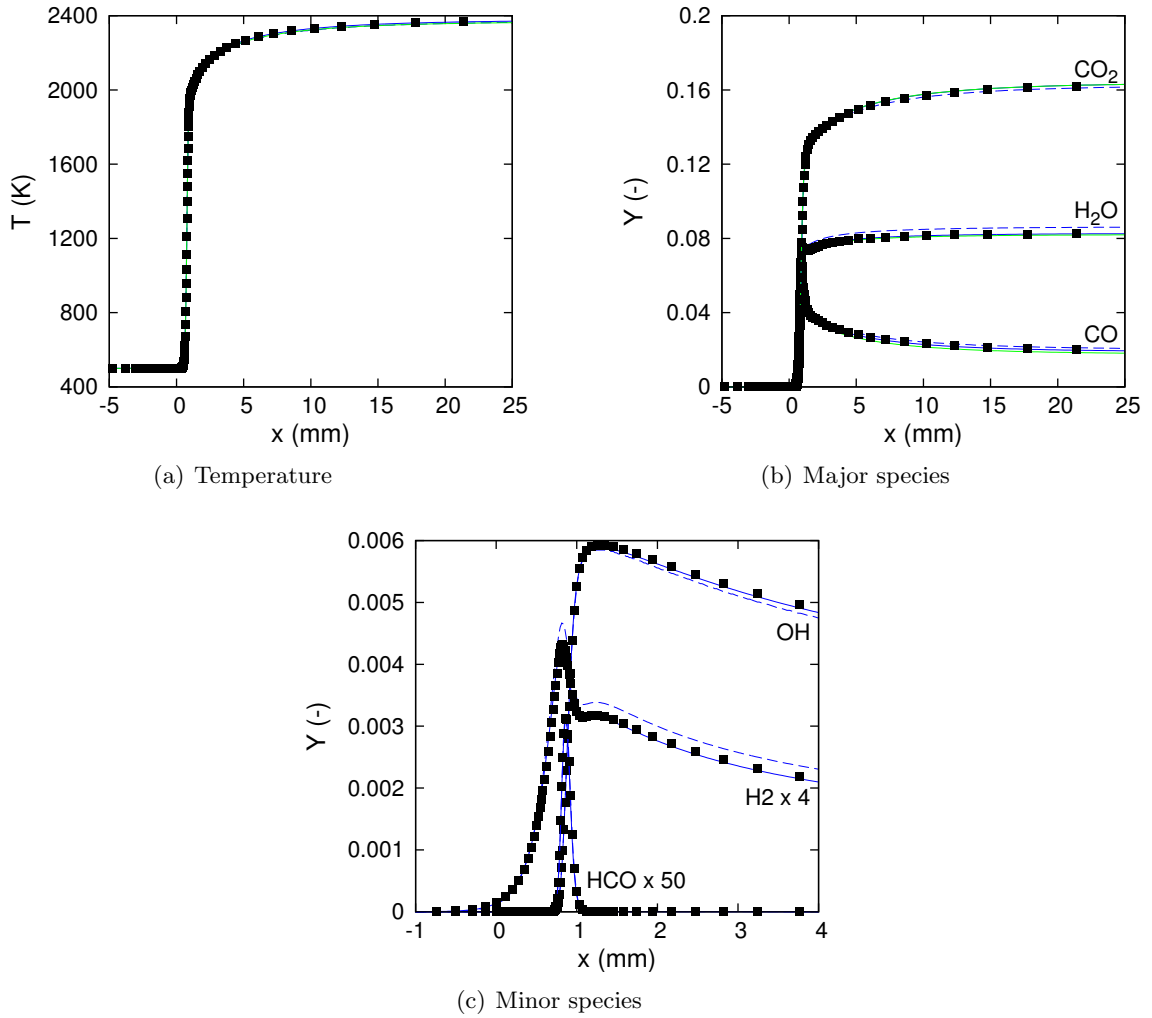


Figure 4.32 – One-dimensional decane-air flame at $\phi = 1$ ($T_u = 300$ K and $P_u = 1$ bar). Squares : reference computed with REGATH. Lines : results from SiTCom-B using different solvers (blue solid : HTTC, blue dashed : fast HTTC, green solid : FPI). OH, HCO and H_2 are not available with the FPI solver.

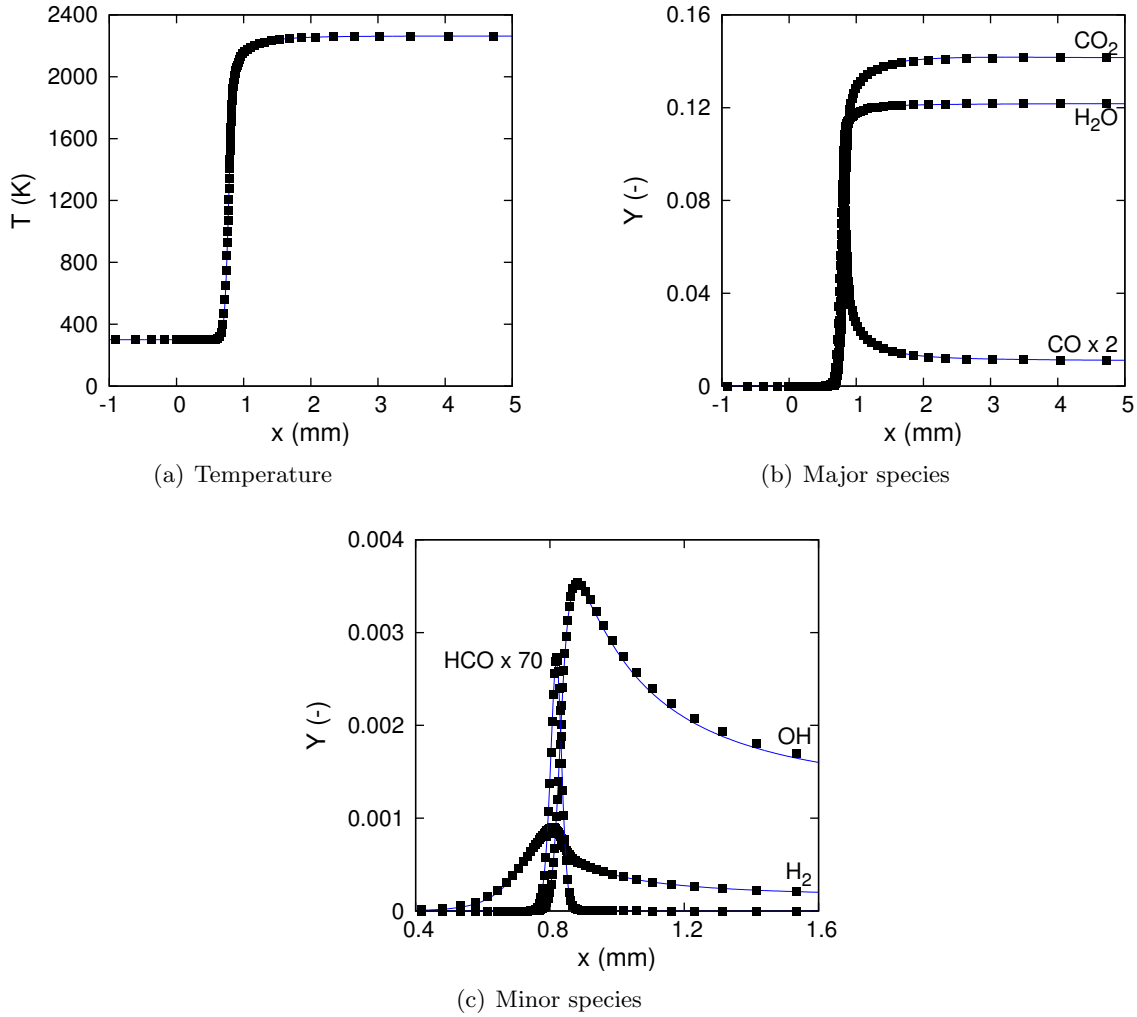


Figure 4.33 – One-dimensional methane-air stoichiometric flame at $P_u = 5$ bar ($T_u = 300$ K). Squares : reference computed with REGATH. Blue solid line : HTTC solver in SiTCom-B.

those of the stored reduced profiles, so the tabulated mass fractions are read in the table without any self-similarity error. A very good agreement between the detailed chemistry of REGATH and the HTTC solver is also achieved for methane flames at high pressures, for $P = 5$ bar (Fig. 4.33) and $P = 20$ bar (Fig. 4.34). The flame speed is also correctly predicted for all these cases (Tab. 4.5).

4.4.2.2 Computation using tables built with a single flame

Reduced tables have been built with a single flame, instead of a full flame database as presented before. These tables have been used in HTTC simulations where the pressure, the fresh gas temperature, or even the fuel, are different from those of the single flame used to build the tables. The purpose is to show that HTTC offers some flexibility on the table resolution, and that flames with P and T_u varying in a small range around the single tabulated values can still be simulated with a correct accuracy.

A table built with a single flame at $\phi = 1$, $P = 1$ bar and $T_u = 500$ K, with pure decane as fuel, has been used to simulate the combustion of a kerosene surrogate with HTTC (see the composition in Tab. 3.2). The results match the detailed chemistry with a small discrepancy (Fig. 4.35). The HTTC results obtained with a table actually built for the surrogate offer a nearly perfect agreement with the

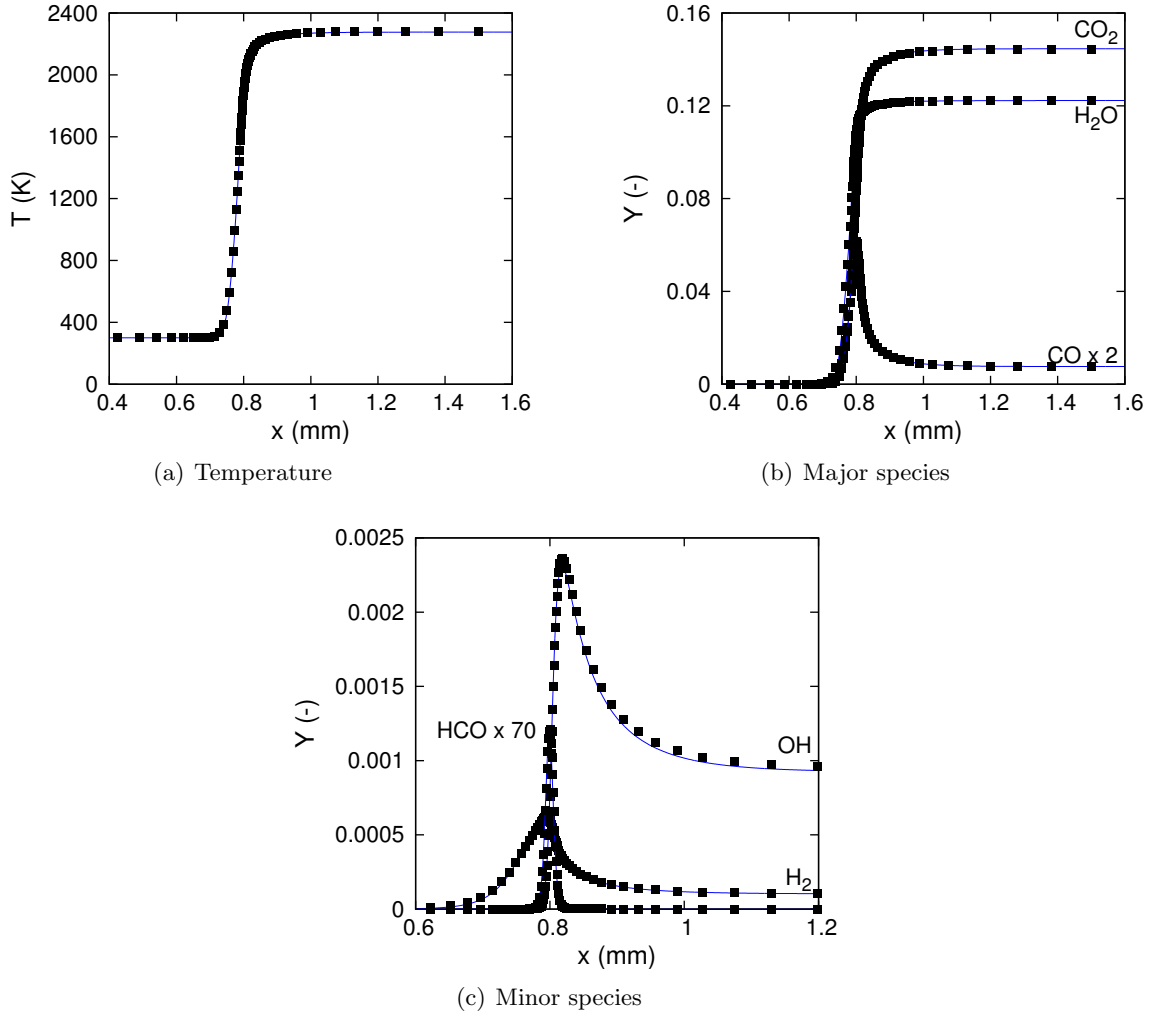


Figure 4.34 – One-dimensional methane-air stoichiometric flame at $P_u = 20$ bar ($T_u = 300$ K). Squares : reference computed with REGATH. Blue solid line : HTTC solver in SiTCom-B.

	REGATH	FTC	HTTC	HTTC fast	FPI
Methane at $T_u = 300$ K					
$P = 1$ bar	0.3665	0.3642 (-0.6%)	0.3645 (-0.5%)	0.3679 (+0.4%)	0.3672 (+0.2%)
$P = 5$ bar	0.2283	0.2195 (-3.9%)	0.2200 (-3.6%)	-	-
$P = 20$ bar	0.1385	0.1323 (-4.5%)	0.1303 (-5.9%)	-	-
Decane at $T_u = 500$ K					
$P = 1$ bar	0.9104	-	0.9011 (-1.0%)	0.9497 (+4.3%)	0.8967 (-1.5%)

Table 4.5 – Flame speed S_L in m.s^{-1} computed with Eq. (3.28), for stoichiometric methane and decane flames simulated with REGATH and the different solvers of SiTCom-B. The results from REGATH are the reference.

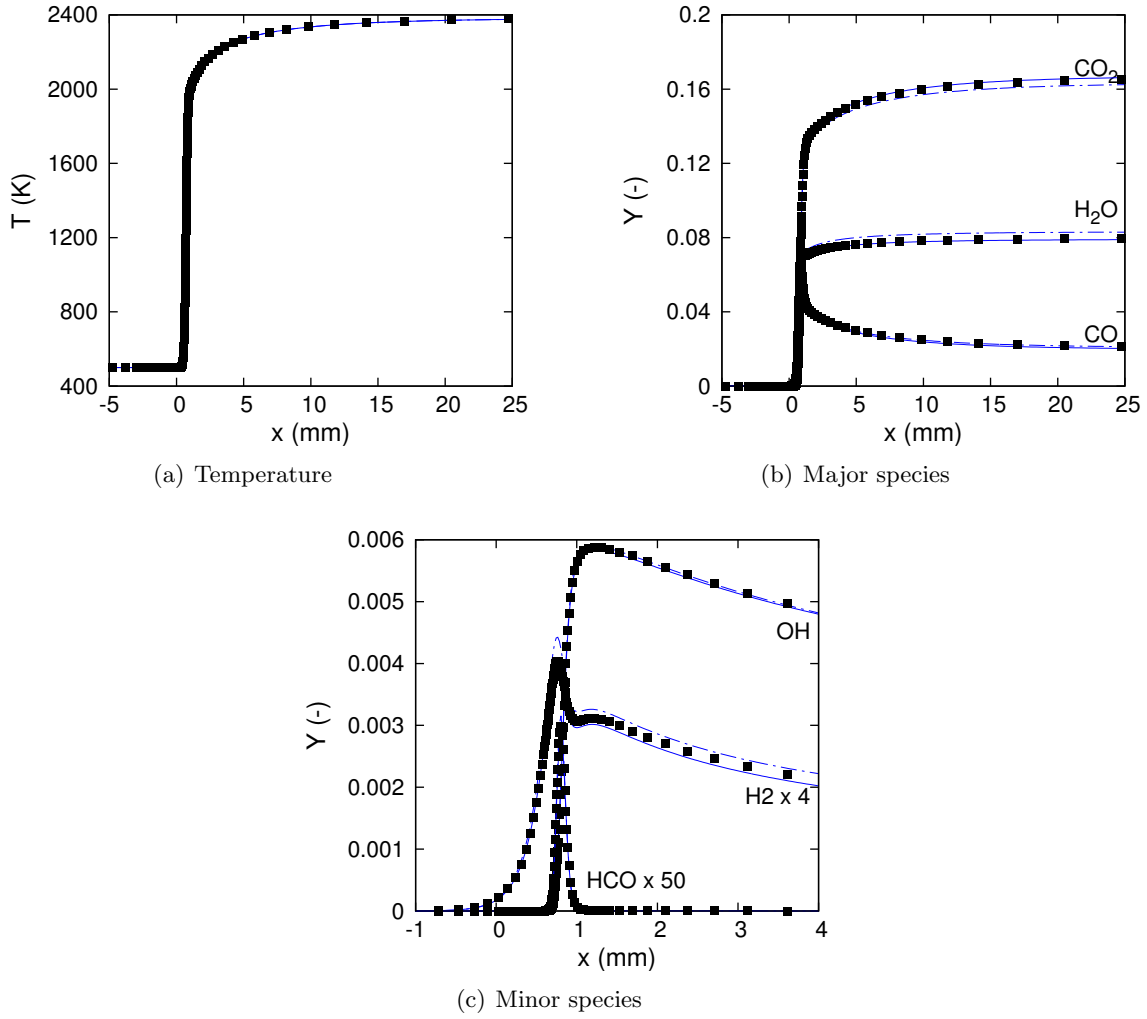


Figure 4.35 – One-dimensional kerosene surrogate-air stoichiometric flame at $P_u = 1$ bar and $T_u = 500$ K. Squares : reference computed with REGATH. — HTTC solver in SiTCom-B, using a full table built for the surrogate, - - idem, but using a table based on a single pure decane flame.

reference.

Likewise, a table based on single decane flame at $\phi = 1$, $P = 15$ bar and $T_u = 500$ K, has been used to compute a flame at $P = 20$ bar (Fig. 4.36), and a table built with a single flame at $T_u = 550$ K has been used to compute two flames at $T_u = 500$ K and $T_u = 600$ K (Fig. 4.37) with a very good agreement with the detailed chemistry. The HTTC tables are then not much sensitive to the number of points in the P and T_u directions. A few points are sufficient to get a correct accuracy, which can be a valuable property to downsize the full tables.

4.4.2.3 Computational efficiency

The computational efficiency of the HTTC solver is now measured and compared with the FTC and FPI solvers of SiTCom-B, for the three kinetic mechanisms used in this work. With the FTC solver, typical values of the global time step required to ensure that the time integration is stable are around 10^{-8} s for methane flames and 10^{-12} s for the decane flames (see section 3.4.2.3 for details about time step calculation). Hence, for the large mechanisms, the time step requirement leads to prohibitive simulation costs. Indeed, billions of iterations would be needed even to simulate a small

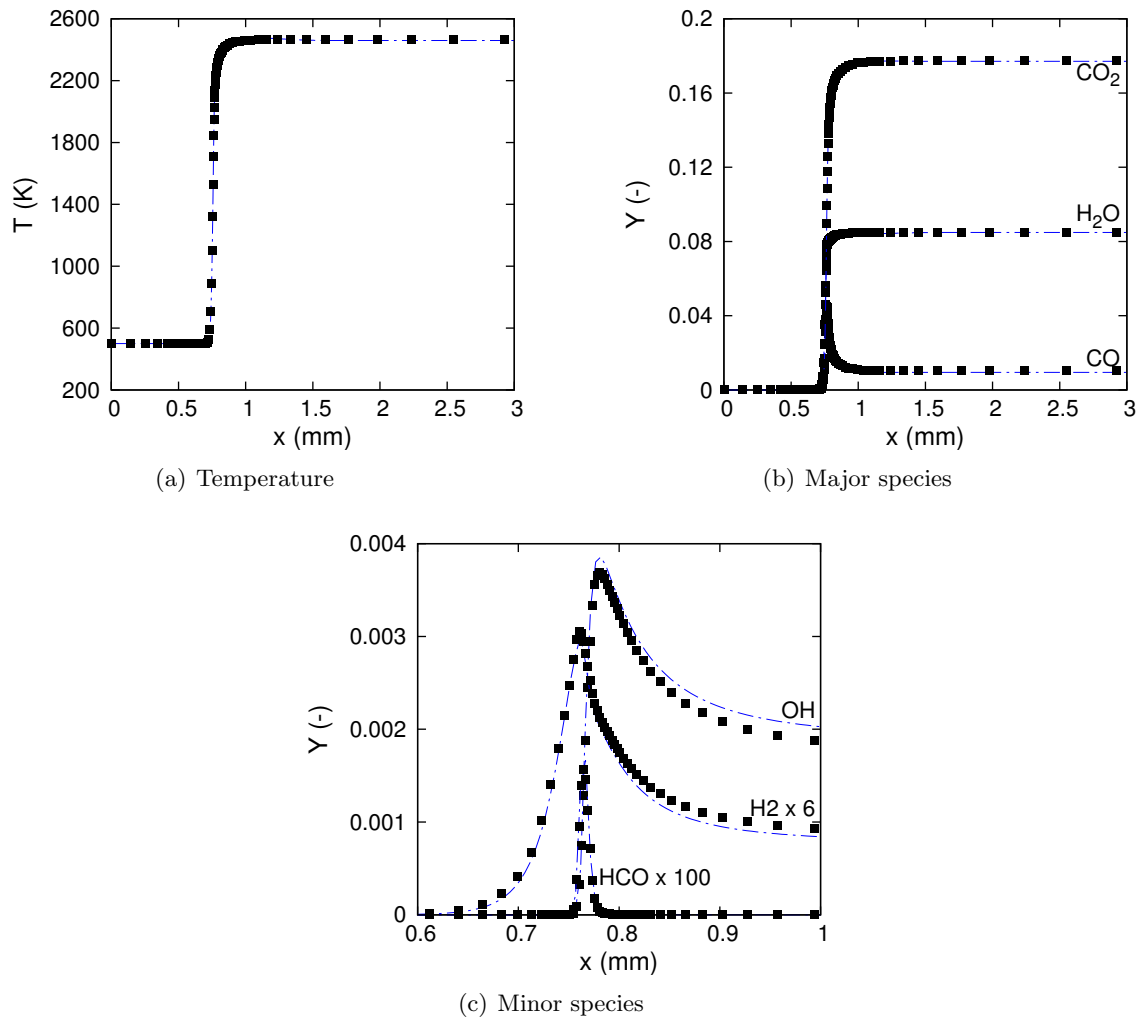


Figure 4.36 – One-dimensional decane-air stoichiometric flame at $P_u = 20$ bar and $T_u = 500$ K. Squares : reference computed with REGATH. — HTTC solver in SiTCom-B, using a table based on a single flame computed at $P = 15$ bar.

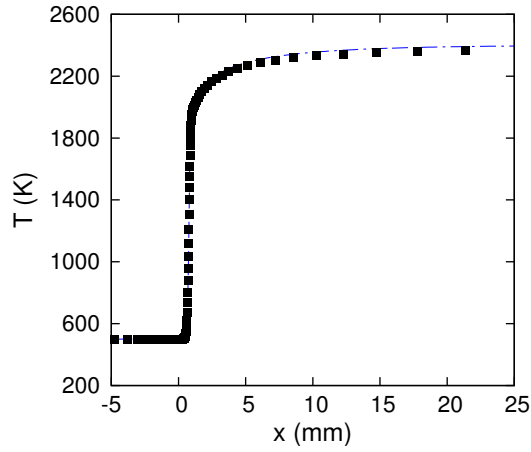
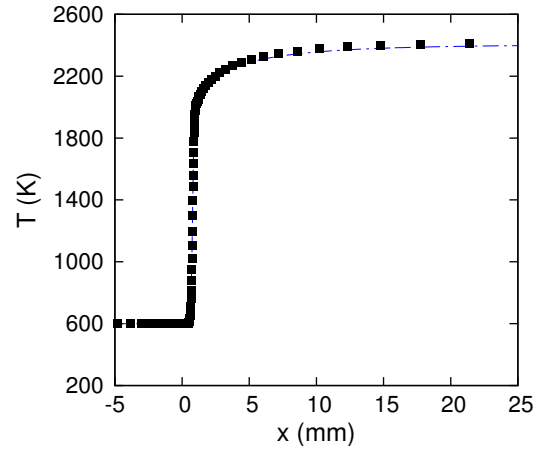
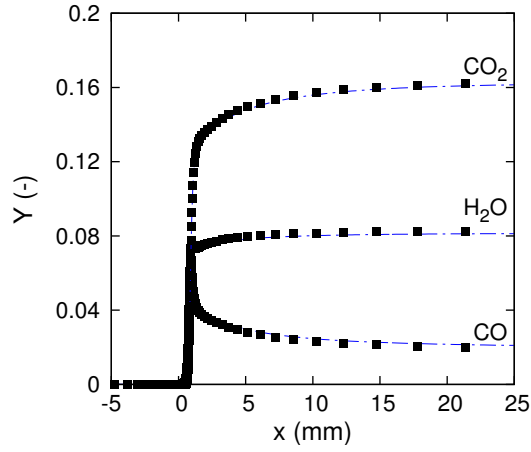
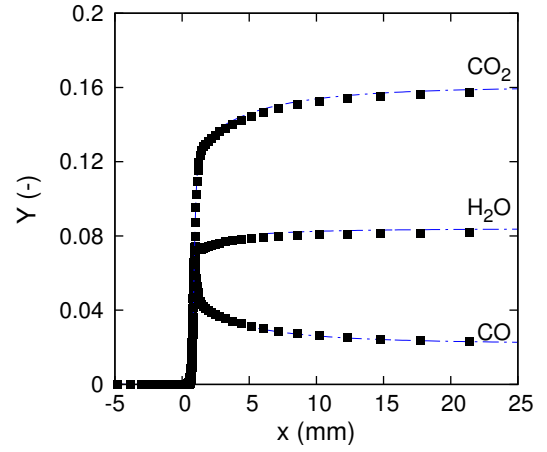
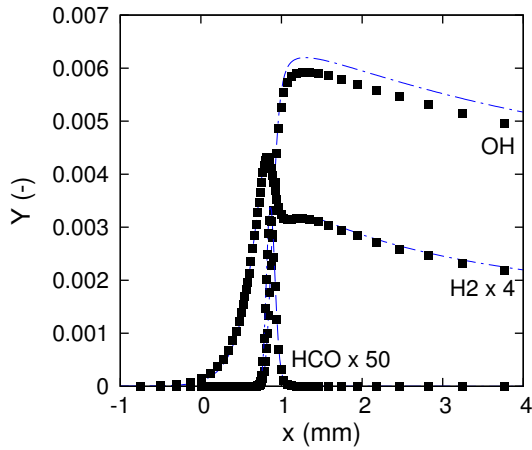
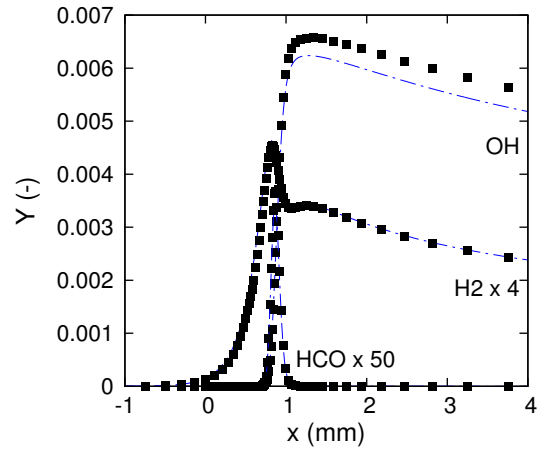
(a) Temperature, $T_u = 500$ K(b) Temperature, $T_u = 600$ K(c) Major species, $T_u = 500$ K(d) Major species, $T_u = 600$ K(e) Minor species, $T_u = 500$ K(f) Minor species, $T_u = 600$ K

Figure 4.37 – One-dimensional decane-air stoichiometric flames at $P_u = 1$ bar, for $T_u = 500$ K (left) and $T_u = 600$ K (right). Squares : reference computed with REGATH. — — HTTC solver in SiTCom-B, using a table based on a single flame computed at $T_u = 550$ K.

Solver	Mechanism	
	Methane	Decane
FTC	9.9×10^{-9}	1.3×10^{-12}
HTTC	3.1×10^{-8}	2.5×10^{-8}
FPI	3.1×10^{-8}	2.5×10^{-8}

Table 4.6 – Average global time step in seconds for 1D simulations performed in SiTCom-B with different solvers and fuels ($\phi = 1$, $P = 1$ bar and $T_u = 300$ K for methane or $T_u = 500$ K for decane). For each simulation, 10^6 time steps have been computed.

physical duration, which is out of the reach of today’s computers. With HTTC, tabulating the radical species allows for a strong increase of the chemical time step, which is the bottleneck of the FTC solver. For methane and decane flames, the chemical time step is now larger than the convective time step, which becomes the new bottleneck. The global time step of the simulations is raised to values between 1×10^{-8} and 5×10^{-8} seconds, depending on the mesh resolution. The values are given in Tab. 4.6 for a cell size of $20 \mu\text{m}$ in the flame front for the methane and $10 \mu\text{m}$ for the decane. For the methane, the computational cost is reduced by a factor 3 thanks to the increase of the global time step. For the decane, the overall cost is reduced by 4 orders of magnitude. Therefore HTTC is particularly efficient when used with large kinetic mechanisms. Thanks to this huge reduction of the cost with HTTC, the simulation of the combustion of heavy fuels with large kinetic mechanisms can now be considered, whereas it was totally out of reach with the FTC solver. This point is the main asset of HTTC. The FPI method offers identical gains on the chemical time step.

Additional computational time can be saved by using the “fast” version of the HTTC solver, which allow for a reduction of the duration of an iteration. In table 4.7, the duration of an iteration is compared for FPI, FTC, and the “fast” HTTC solver of SiTCom-B, for methane, decane and iso-octane. The amount of time dedicated to the calculation of the fluxes, the source terms and the thermodynamic variables is individually measured. First, two points should be noted :

- The FPI solver of SiTCom-B used in this work is not optimized. It should be much faster than HTTC and FTC, because only two transport equations are solved for the control parameters, instead of many transport equations for the chemical species. Then, the performances of the FPI solver will not be further investigated.
- The results for the iso-octane are presented as a proof of concept. Only a few iterations have been executed with the HTTC and the FTC solvers to measure the performances of the code.

A considerable time saving is done with HTTC during the computation of the fluxes, but also of the thermodynamical variables and the transport coefficients, compared to FTC, because the set M of the transported species is used (with $N_M \approx 15$ whatever the mechanism), instead of the full set of species. Thus, the larger is the mechanism, the larger are the time savings, which an interesting feature of HTTC, in the frame of the combustion of heavy fuels. The time spent in the source term calculation is nearly identical for both HTTC and the detailed chemistry solver, since the full set reactions is computed with both solvers, using the same code. With HTTC, the cost of one iteration is nearly unchanged for the methane, is reduced by around 30% for the decane and is divided by a factor 8 for the iso-octane. This extra cost savings is added to the time saved thanks to the increase of the chemical time step.

Task	Mechanism					
	Methane		Decane		Iso-octane	
Convective and diffusive fluxes	1.54		5.57		28.31	
	1.12	(-27.3%)	1.15	(-79.4%)	1.12	(-96.0%)
	2.79	(+81.2%)	2.76	(-50.4%)		
Source terms	2.19		6.77		46.60	
	2.14	(-2.3%)	6.29	(-7.1%)	43.80	(-6.0%)
	-	(-)	-	(-)		
Thermo variables, transport coefficients and miscellaneous quantities	4.10		11.75		357.26	
	4.04	(-1.5%)	10.03	(-14.6%)	10.53	(-97.1%)
	6.12	(+49.3%)	6.12	(-47.9%)		
Other tasks	1.37		3.65		36.52	
	0.96	(-29.9%)	1.02	(-72.1%)	1.15	(-96.9%)
	1.62	(+18.2%)	1.60	(-56.2%)		
Total						
FTC	9.20		27.94		468.69	
Fast HTTC	8.26	(-10.2%)	18.49	(-33.8%)	56.60	(-87.9%)
FPI	10.53	(+14.5%)	10.48	(-62.5%)		

Table 4.7 – Duration (in micro-seconds) of one iteration, with the three solvers present in SiTCom-B, for the three kinetic mechanisms used in this study. The percentages are the relative differences with FTC.

4.4.3 Self-similarity errors

Even if the reduced mass fractions profiles seem to be globally well superimposed on the top of each other, small differences between the profiles show up when a zoom on the fresh gas and the burnt gas side is done (Fig. 4.38), especially for profiles plotted for different values of the equivalence ratio.

These self-similarity errors are an issue when, for some species, the stored reduced profile is above the actual reduced profile that should be used instead. In this case, for Y_c equal to its equilibrium value, non-zero mass fractions are given by the table, while they should be zero. As an example, in a rich methane flame (for $\phi = 1.4$) the mass fraction of CH reaches zero for $Y_c^+ \approx 1.3$ (Fig. 4.38(b)). However, if the stoichiometric reduced profile is chosen to be stored in the table, a non-zero value of Y_{CH} will be set for $Y_c^+ = 1.3$. It means that chemical reactions, and then heat release, can happen in the burnt gases, because of the unintended presence of those radical species. A similar problem can happen on the fresh gas side for $Y_c = 0$. As a consequence, totally inaccurate results are obtained (Fig. 4.39), even if the discrepancies between the reduced mass fractions seems to be small. The mass conservation is damaged, and the code can even crash. This phenomenon happens both for methane and decane flames.

Some HTTC simulations where T_u is different from the value used for the stored reduced profiles (*i.e.* in this work, $T_u = 300$ K for the methane and $T_u = 500$ for the decane) also failed because of this issue, that shows up especially on the fresh gas side. In this case, unexpected chemical reactions happen everywhere in the fresh gases (for $Y_c = 0$), which causes a quick crash of the code.

As a solution, for all the sets S with a reduced profile under the stored reduced profile, the latter is replaced by a quadratic curve (Fig. 4.40) for $Y_c^+ < 0$ and for $Y_c^+ > 1$, to ensure that $Y_k(0, S) = 0$ and $Y_k(Y_{c,eq}, S) = 0, \forall S \in \Omega_S, \forall k \in m$, even if larger self-similarity errors may occur elsewhere on the profiles. For all the problematic profiles, two additional reduction parameters $Y_{c,0}^+$ and $Y_{c,1}^+$, defined by $Y^+(Y_{c,0}^+) = 0$ and $Y^+(Y_{c,1}^+) = 0$, are stored in the HTTC table. They are used to calculate the quadratic polynomials in the fresh gases and the burnt gases, respectively. For example on the burnt gas side, for $Y_c^+ \in [1, Y_{c,1}^+]$, the polynomial is defined by :

$$Y^+(Y_c^+) = a (Y_c^+)^2 + bY_c^+ + c \quad (4.23)$$

with

$$\begin{aligned} a &= \frac{1}{(2 - Y_{c,1}^+)^2} \\ b &= -2aY_{c,1}^+ \\ c &= -4a - 2b \end{aligned} \quad (4.24)$$

If the value of $Y_{c,0}^+(S)$ (resp. $Y_{c,1}^+(S)$) is smaller (resp. larger) than the value for the tabulated reduced profile, this correction is not needed, and Y^+ is computed using the standard procedure, based on the tabulated reduced profile and the reduction parameters corresponding to S . The table generation tool automatically computes those two additional reduction parameters if required, and stores them in the table.

Lean and rich methane and decane flames, computed with this correction, are plotted along results from the FPI and detailed chemistry solvers (Fig 4.41, 4.42, 4.43, 4.44). A good agreement is achieved for the lean flames, but a small discrepancy for the rich flames remains, especially for the minor transported species.

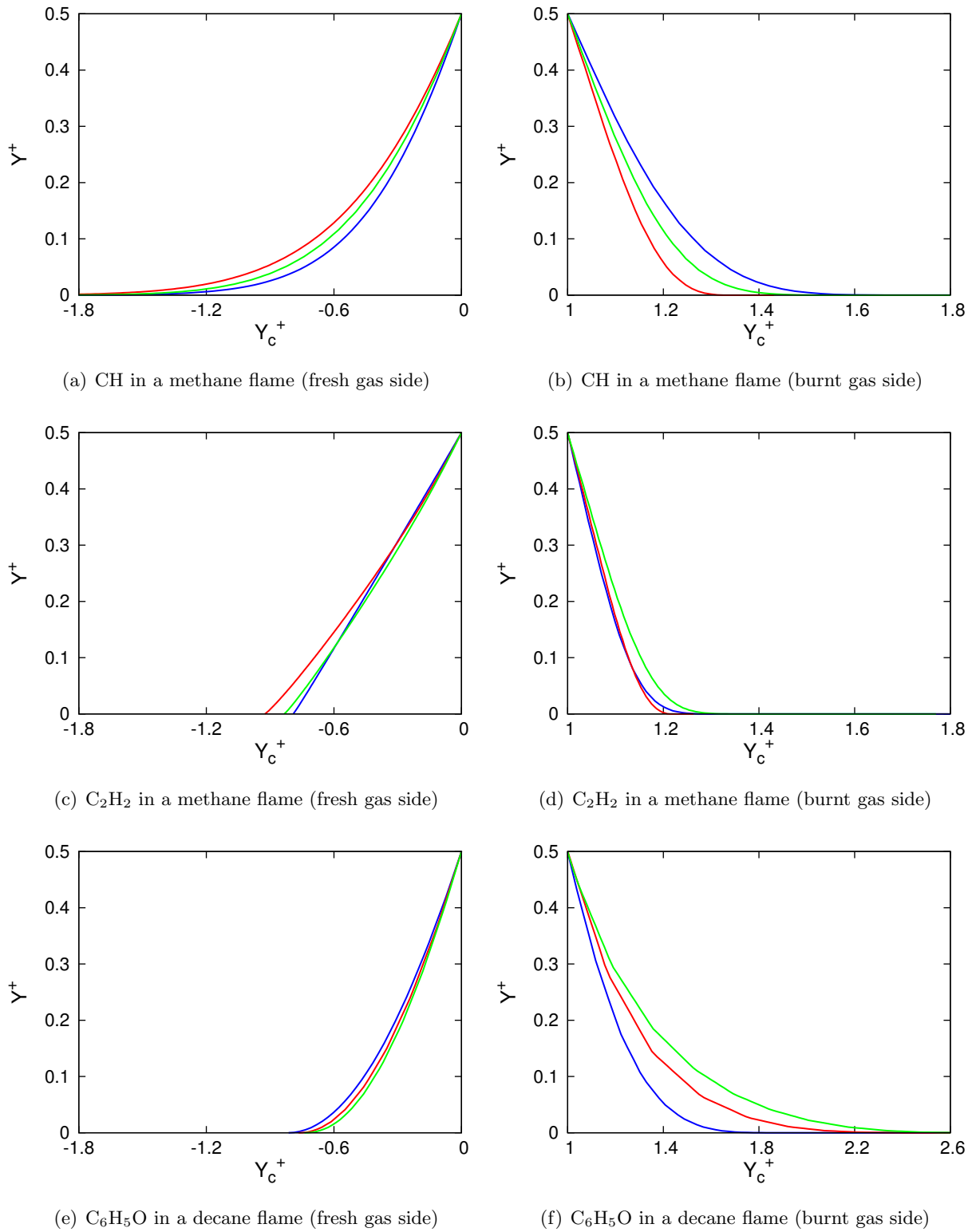


Figure 4.38 – Reduced mass fraction profiles for a few radical species present in methane or decane flames. Enlargements of the fresh gas (left column) and the burnt gas (right column) zones are displayed. Three profiles are plotted, for $\phi = 0.6$ (blue), $\phi = 1.0$ (green) and $\phi = 1.4$ (red).

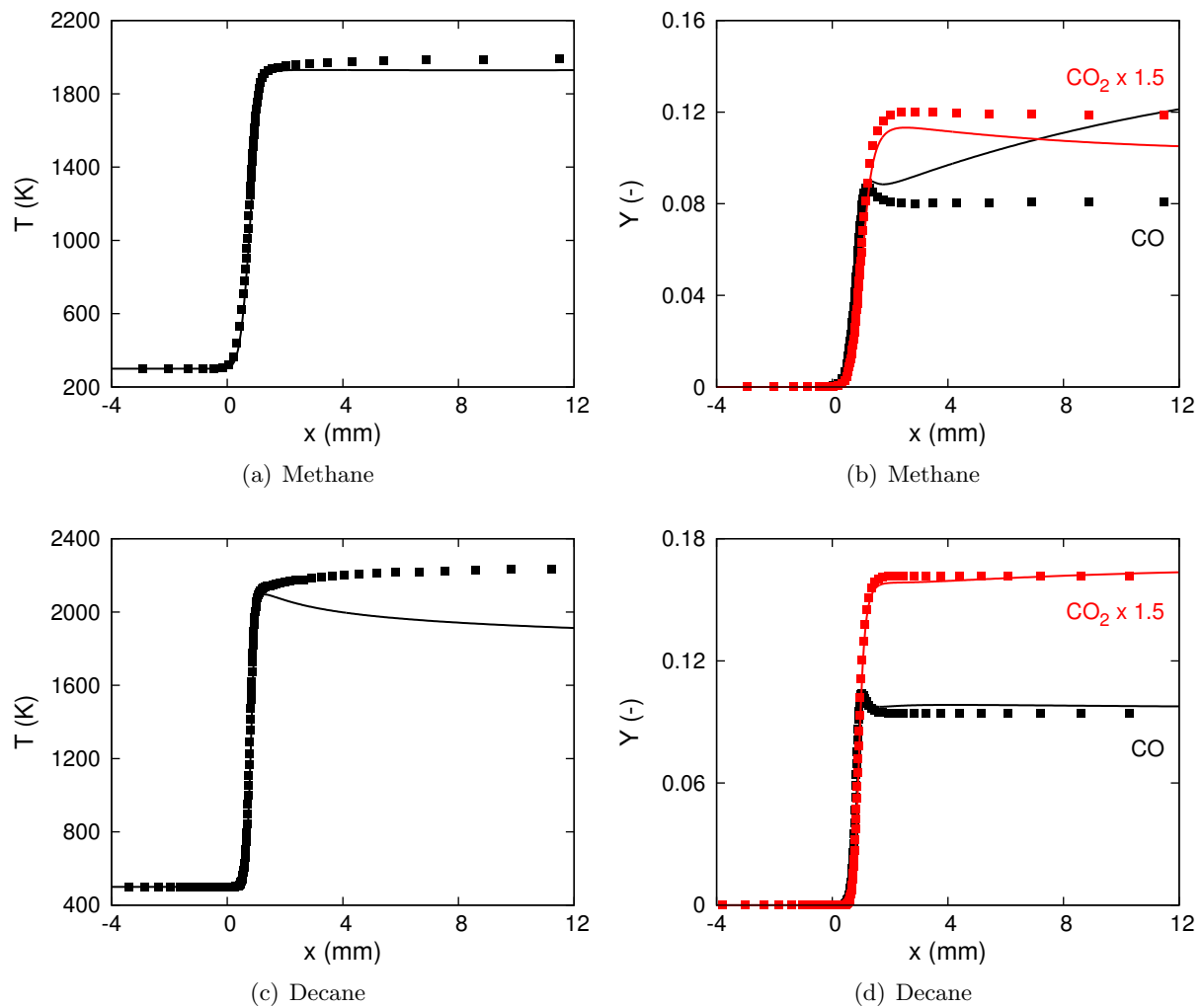


Figure 4.39 – Temperature, CO and CO₂ mass fractions in methane (top) and decane (bottom) rich flames ($\phi = 1.4$). Squares : reference detailed chemistry from REGATH, lines : HTTC solver in SiTCom-B, without any self-similarity correction.

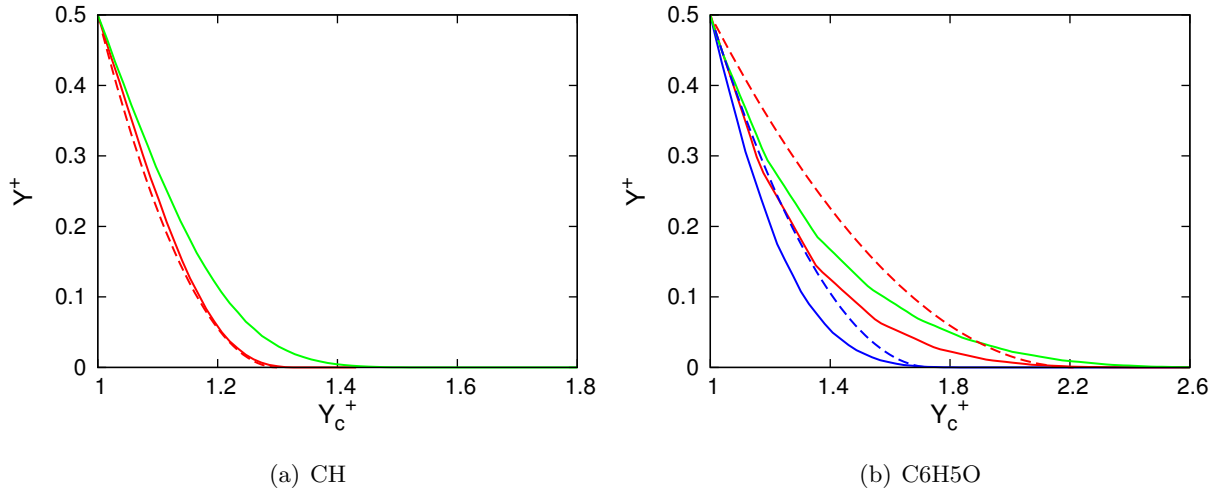


Figure 4.40 – Reduced mass fraction profiles for radical species in methane flames. Enlargements of the burnt gas area are shown. Solid lines : reduced profiles from the database, dashed lines : quadratic correction used instead of the reduced profiles. The blue lines are for lean flames, the green ones for stoichiometric flames and the red ones for rich flames.

4.4.4 Mass conservation

Every combustion code is exposed to mass conservation errors, because of computer rounding errors, and because of a potential overshooting during the species transport. Additional error sources for the mass conservation are introduced by the HTTC method, due to some aspects intrinsic to the method itself :

- When the flame database is generated, the total mass is constant along the whole domain. During the simulation however, for a given value of Y_c , the mass fractions of the transported species may be different from the 1D tabulated flames, so the tabulated species mass fractions are not consistent with the transported species. This case causes a violation of the mass conservation.
- The mass fraction is built using the transported species at the current time step, but the tabulated species at the previous time step (Eq. (4.7)).
- With the “fast” formulation of the HTTC solver, the correction velocity is only based on the transported species, instead of the full set of species (Fig. 4.45). As a consequence, it cannot fully counterbalance the mass error due to the approximation of Hirschfelder and Curtiss to compute the diffusion coefficients (Eq. (2.40)).

The sum of the mass fractions of the full species set is then different from 1 :

$$\sum_{k=1}^{N_{sp}} Y_k = \sum_{k \in M} Y_k + \sum_{k \in m} Y_k = 1 + \epsilon \quad (4.25)$$

where ϵ is a non-zero real number. The sum of the tabulated species mass represents a small part only of the total mass flow (Fig. 4.46), since it is less than 1% in the methane flames, and at most 5% in the richest flames of the decane database. The error ϵ is then expected to be very small. However, it must be corrected at every iteration, to avoid a drift of the total mass during the simulation that may finally lead to completely inaccurate and erroneous results. Every species of the full set is corrected

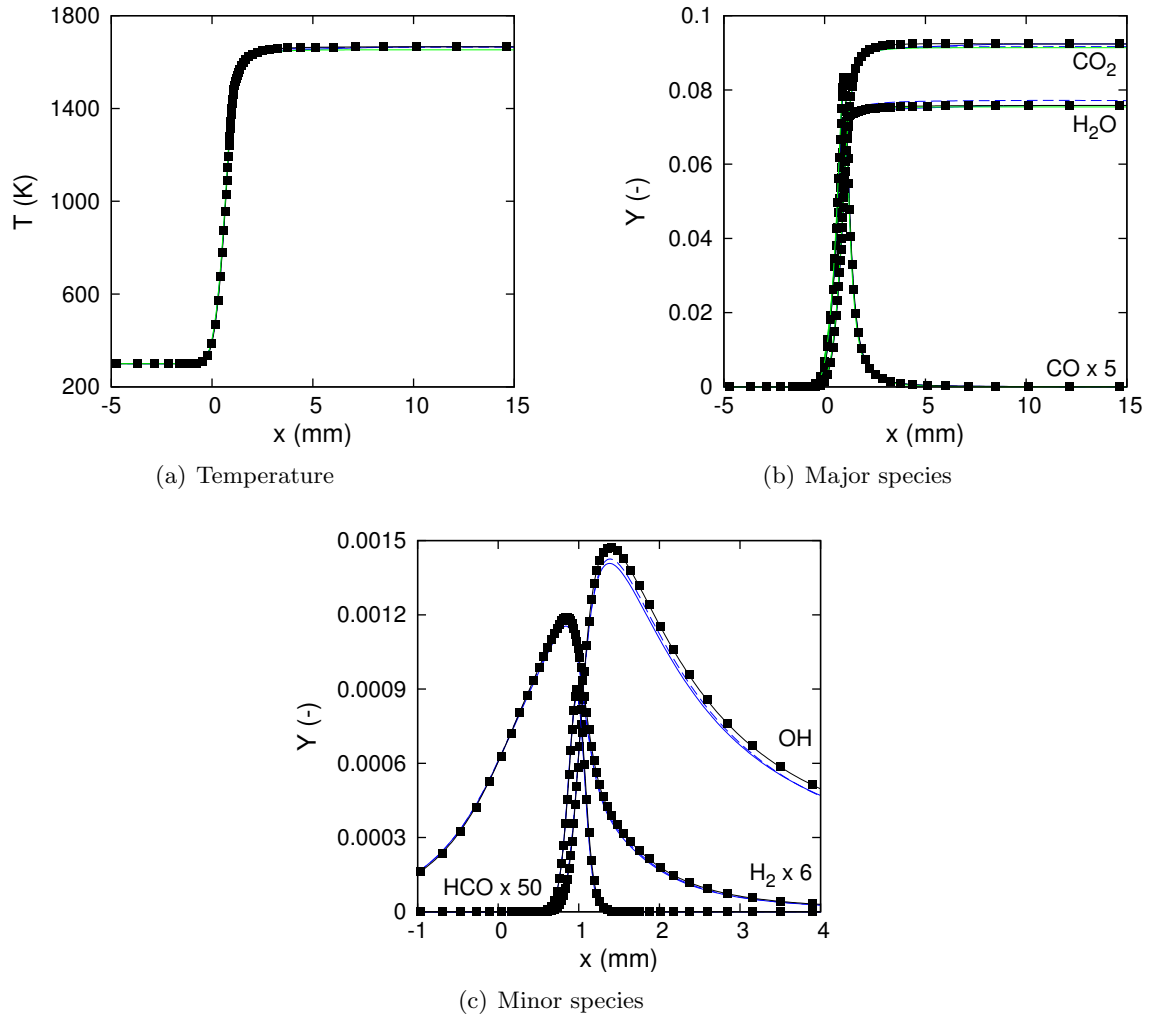


Figure 4.41 – One-dimensional methane-air flame at $\phi = 0.6$ ($T_u = 300$ K and $P_u = 1$ bar). Squares : reference computed with REGATH. Lines : results from SiTCom-B using different solvers (black solid : FTC, blue solid : HTTC, blue dashed : fast HTTC, green solid : FPI). OH, HCO and H_2 are not available with the FPI solver.

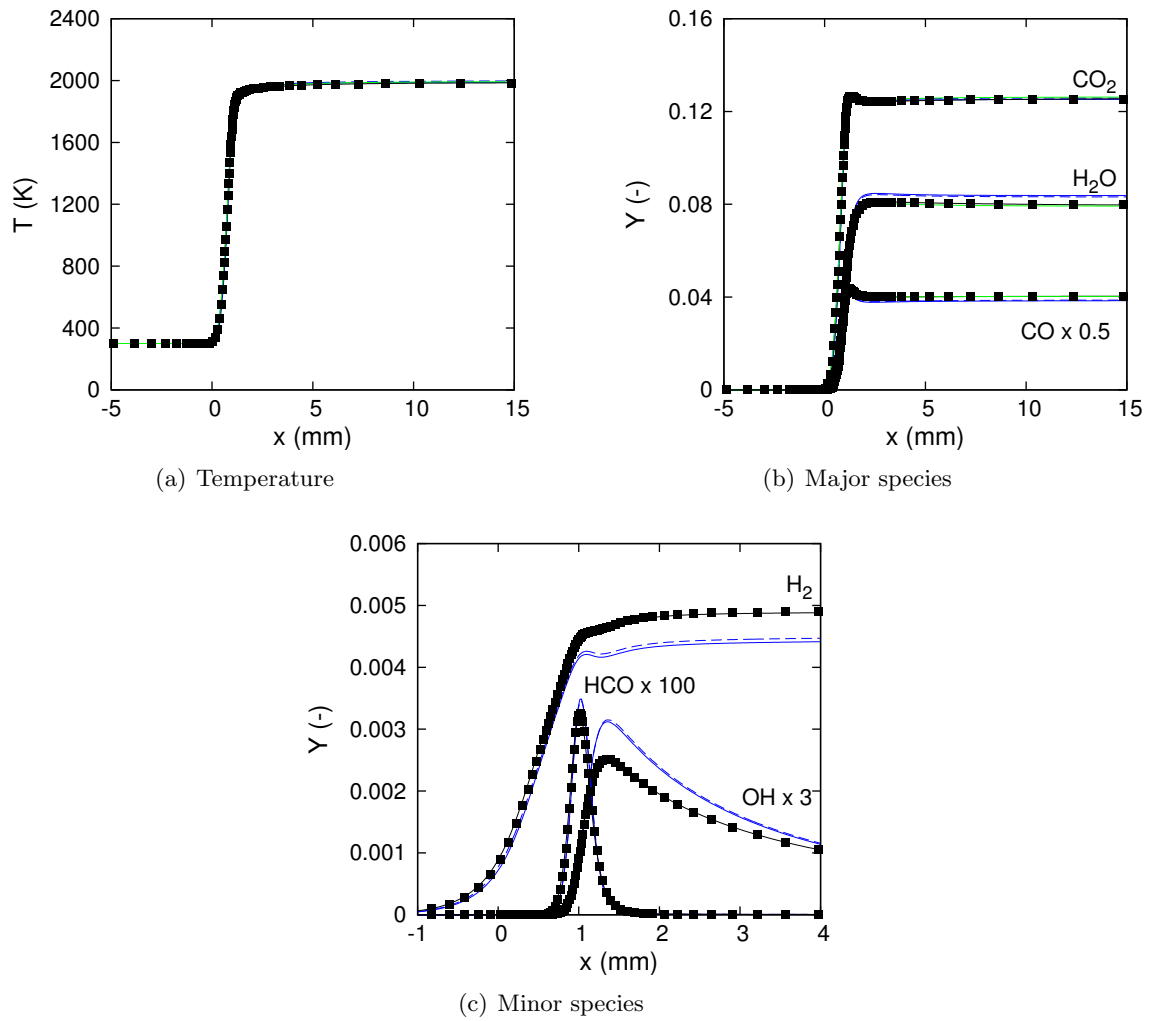


Figure 4.42 – One-dimensional methane-air flame at $\phi = 1.4$ ($T_u = 300$ K and $P_u = 1$ bar). Squares : reference computed with REGATH. Lines : results from SiTCom-B using different solvers (black solid : FTC, blue solid : HTTC, blue dashed : fast HTTC, green solid : FPI). OH, HCO and H_2 are not available with the FPI solver.

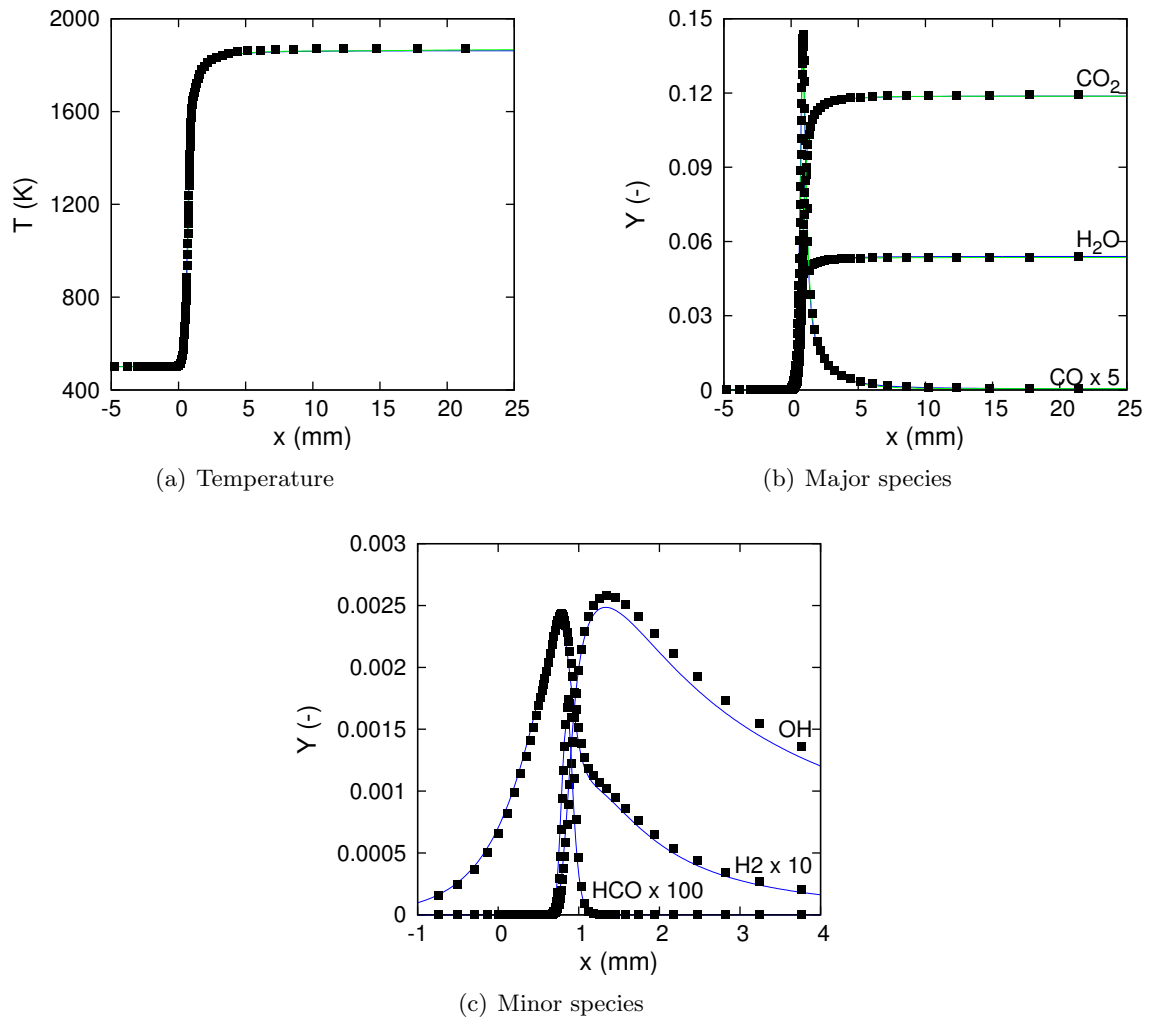


Figure 4.43 – One-dimensional decane-air flame at $\phi = 0.6$ ($T_u = 300$ K and $P_u = 1$ bar). Squares : reference computed with REGATH. Lines : results from SiTCom-B using different solvers (blue solid : HTTC, green solid : FPI). OH, HCO and H_2 are not available with the FPI solver.

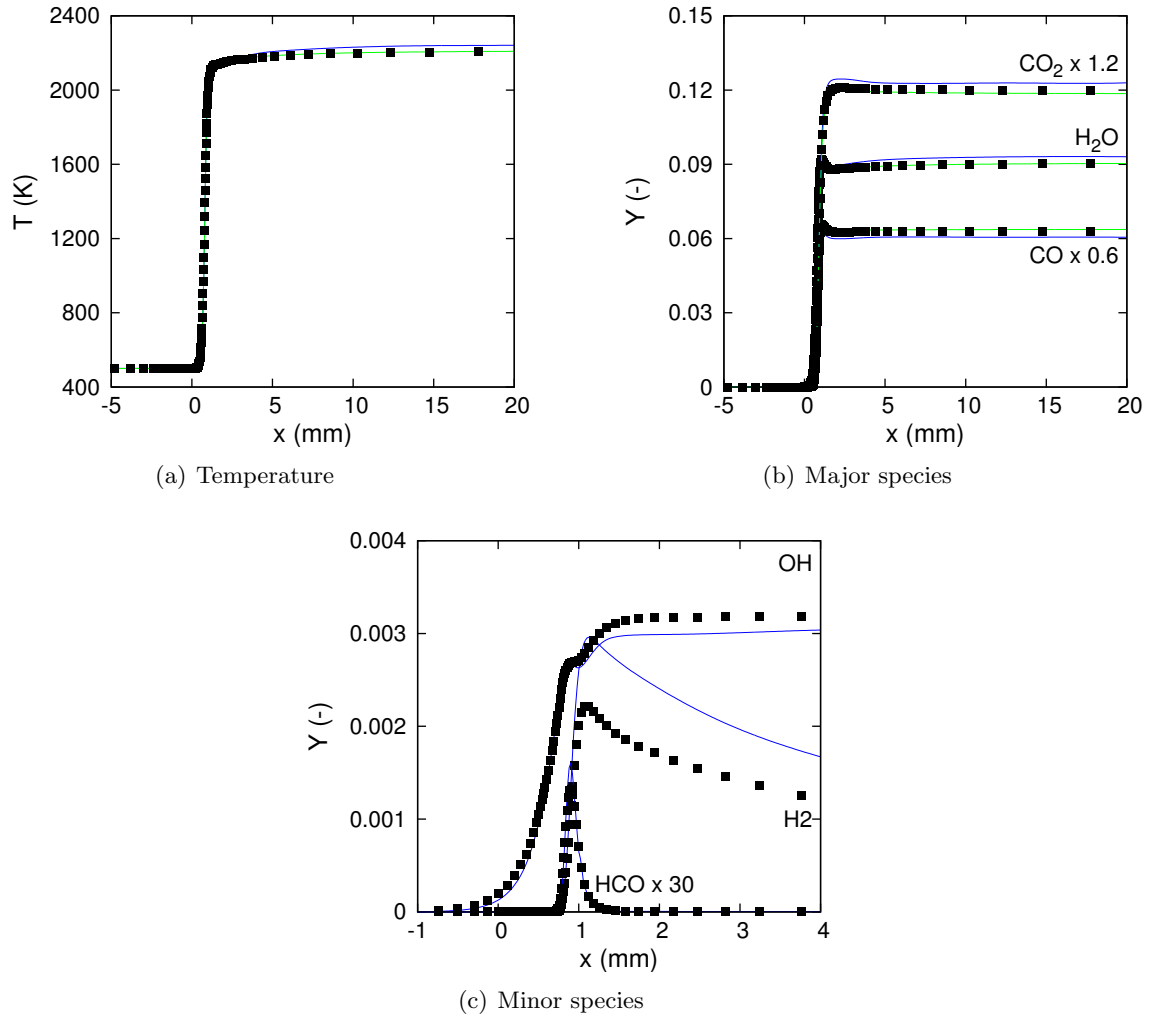


Figure 4.44 – One-dimensional decane-air flame at $\phi = 1.4$ ($T_u = 300$ K and $P_u = 1$ bar). Squares : reference computed with REGATH. Lines : results from SiTCom-B using different solvers (blue solid : HTTC, green solid : FPI). OH, HCO and H_2 are not available with the FPI solver.

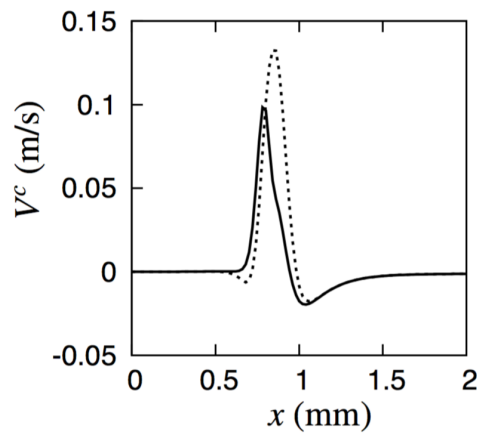


Figure 4.45 – Correction velocity computed in a stoichiometric methane flame with the mechanism of Lindstedt, using the detailed chemistry solver in SiTCom-B. Solid line : the full set of species is used to calculate the correction velocity, dashed line : the transported species only are used.

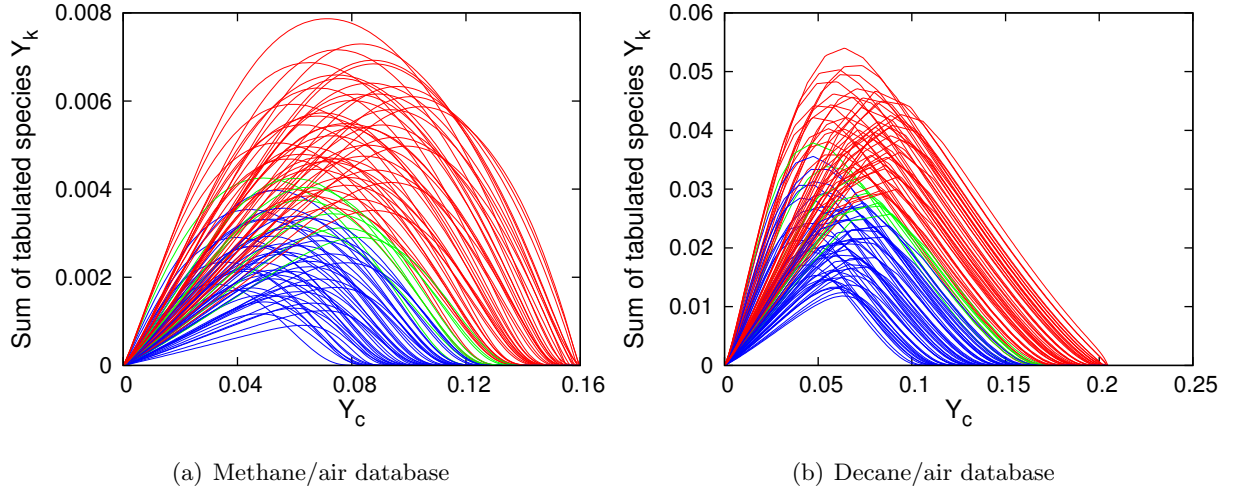


Figure 4.46 – Sum of the tabulated species mass fractions in each flame of the full databases.

— lean flames, — stoichiometric flames, — rich flames

to ensure that their sum is equal to 1 :

$$Y_k^{cor} = \frac{Y_k}{1 + \epsilon}, \forall k \in [1, N_{sp}] \quad (4.26)$$

where Y_k^{cor} is the corrected value of the mass fraction of the species k .

4.4.5 NOx computation with HTTC

As shown previously, the formation of the NOx species involves the presence of radicals species containing nitrogen atoms, both in the flame zone and in the burnt gases. If the radicals in the flame are readily self-similar and tabulated using the standard HTTC tabulation process, the species in the burnt gases are out of the scope of the self-similarity. To work around this issue, all the species containing nitrogen could be transported. However, it does not bring anything new to this study. Anyhow two other approaches can be considered to deal with the NOx chemistry in the frame of the HTTC method, depending on the amount of available computing resources and the required level of accuracy for these species. The chemistry of the species that do not contain nitrogen atoms is still computed using the detailed kinetics, with the standard HTTC method presented so far. The two approaches are as follows :

1. The radical species with nitrogen in the flame are tabulated, using self-similarity. The main NOx species (NO, NO₂ and N₂O) are transported, and their mass fraction is used to build a progress variable well suited to catch the variation of all the other radical species with nitrogen of the detailed kinetic mechanism in the burnt gases. The latter are tabulated by storing their raw mass fraction profiles in the table, since the self-similarity cannot be used. Since most of the mass of the nitrogen species is contained in the main transported NOx species, the total mass of the tabulated species is still small, so the mass conservation is not damaged.
2. The NOx chemistry is modeled with a reduced mechanism, instead of using the initial detailed mechanism. All the nitrogen are transported in this case. Although this method requires only a small overhead to compute the NOx species, it is also expected to be the less accurate.

Decane flames are computed using the HTTC solver in SiTCom-B with the two approaches. The mass fractions of the three main NOx species of interest (NO, NO₂ and N₂O) are compared with

reference results coming from the 1D flame solver REGATH. Three equivalence ratios are tested ($\phi = 0.6, 1.0$ and 1.3). For the first approach, the mechanism of Luche *et al.* for pure decane, including a detailed mechanism for the nitrogen species, with a total of 87 species and 942 reactions, is selected. The species NO , NO_2 and N_2O are added to the transported species set. For the second approach, a reduced mechanism for the NO_x species, including transported 4 species (N , NO , NO_2 and N_2O) and 9 reactions, is used in addition to the mechanism of Luche *et al.* for pure decane without NO_x , which contains 70 species and 697 reactions. See section 3.1.3 for more information about those mechanisms.

The reduced mechanism for the NO_x gives the correct equilibrium value of the mass fractions (Fig. 4.47, 4.48 and 4.49), but is unable to predict the NO_x mass fractions in the flame. The prompt NO_x , which are formed because of reactions with radical species in the flame area, cannot be calculated, since these reactions are missing, which explains the totally erroneous mass fraction in the flame. With the detailed kinetics however, the main NO_x species are computed with a good agreement with the detailed chemistry, both in the flame and in the burnt gases. The influence of the parameter α (Eq. (4.12)), which sets the balance between the NO_x species and the other species used in the progress variable, is also shown. When α is equal to 1, the main NO_x species are correctly calculated because, in the flame, the value of Y_c is driven by $Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$, so the tabulated NO_x mass fractions are read with a good precision. However, further in the burnt gases, $Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ has reached its equilibrium, the radical NO_x are not correctly read in the table, and the main NO_x species are computed with a bad accuracy. This issue is fixed by setting the proper value of α (Eq. (4.12)).

With the two approaches, the global cost of the simulation is almost not affected when the NO_x chemistry is added to the kinetic mechanism. The chemical time step is still higher than the convective time step thanks to the tabulation of all the radical species for the first approach, or because the radical species are not present in the kinetics when using the second approach. If the fast version of the HTTC solver is used, the first approach, which takes all the nitrogen species into account, requires a computation cost barely higher than the second approach, since the number of transported NO_x species is nearly identical, even if there is a small overhead due to the table reading.

4.5 Conclusion

In this chapter, the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry approach has been described. This method relies on the tabulation of the radical species mass fractions, in very compact tables, by taking advantage of the self-similarity property of the mass fraction profiles. It has been shown that the self-similarity can be applied for several light or heavy hydrocarbons, whatever the kinetic mechanism used to model the chemistry, provided that the proper procedure is used to reduce each different shape of profile.

The HTTC method has been fully implemented in SiTCom-B, and modified to work properly in a DNS/LES code. An automatized tool to build up tables for the HTTC solver has been developed. Given a 1D premixed flame database, it performs all the required steps (e.g. choice of the tabulated species, analysis of the shapes of the mass fraction profiles, computation of the self-similar reduction parameters, etc.) to provide the user a table compatible with the HTTC solver of SiTCom-B. Several methods of prolongation has been developed, to extend the working range of the tables out of the flammability limits of the premixed flames.

The implementation of the HTTC solver in SiTCom-B has been validated by a comparison with fully-transported detailed chemistry results, for methane and kerosene flames including the formation of NO_x , in 1D premixed flames. A huge reduction of the computational cost, in comparison with the FTC solver, has been achieved, by a factor 3 for methane flames, and by around 4 orders of magnitude

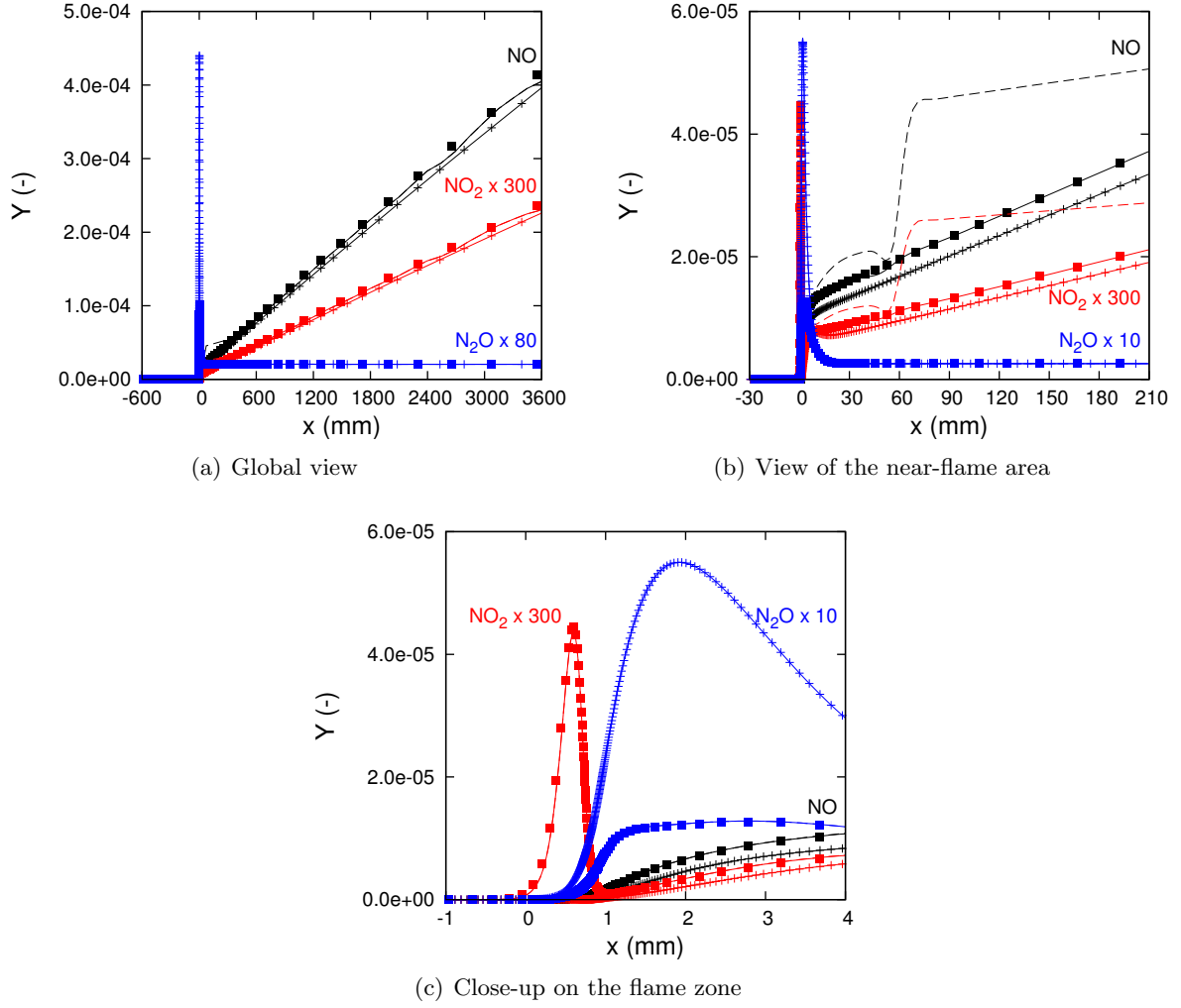


Figure 4.47 – Mass fraction of the main NO_x species (NO , NO_2 and N_2O) in a decane-air flame at $\phi = 0.6$ ($T_u = 500$ K and $P_u = 1$ bar). Three levels of enlargement are displayed. Different scaling factors are used for the sake of readability. Squares : reference flame computed in REGATH using the fully-detailed mechanism for the NO_x . Solid lines with symbols + : HTTC with reduced mechanism for the NO_x . Solid lines and dashed lines : HTTC using the fully-detailed mechanism for the NO_x , with $\alpha = 120$ and $\alpha = 1$, respectively.

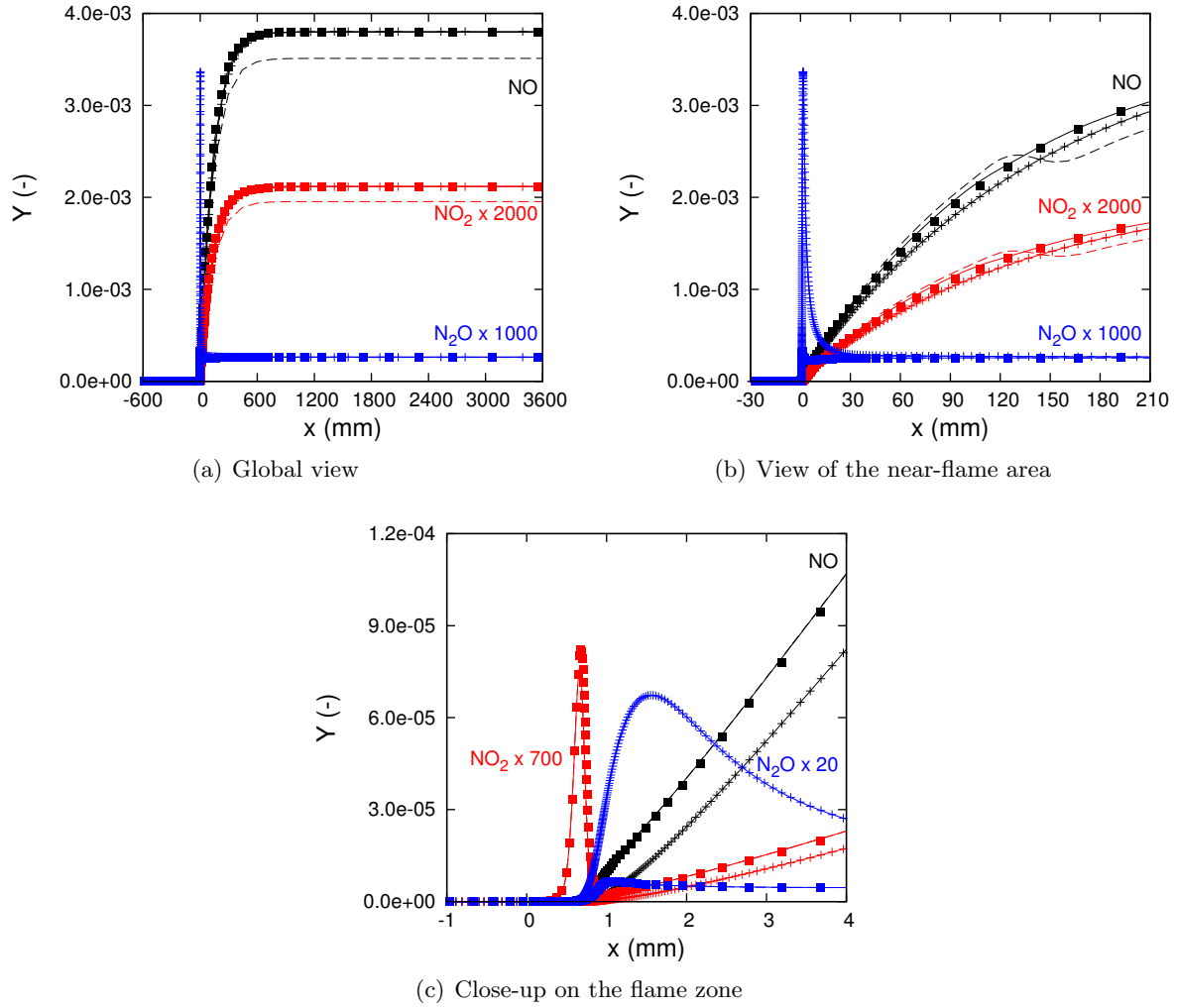


Figure 4.48 – Mass fraction of the main NO_x species (NO , NO_2 and N_2O) in a decane-air flame at $\phi = 1$ ($T_u = 500$ K and $P_u = 1$ bar). Three levels of enlargement are displayed. Different scaling factors are used for the sake of readability. Squares : reference flame computed in REGATH using the fully-detailed mechanism for the NO_x . Solid lines with symbols + : HTTC with reduced mechanism for the NO_x . Solid lines and dashed lines : HTTC using the fully-detailed mechanism for the NO_x , with $\alpha = 50$ and $\alpha = 1$, respectively.

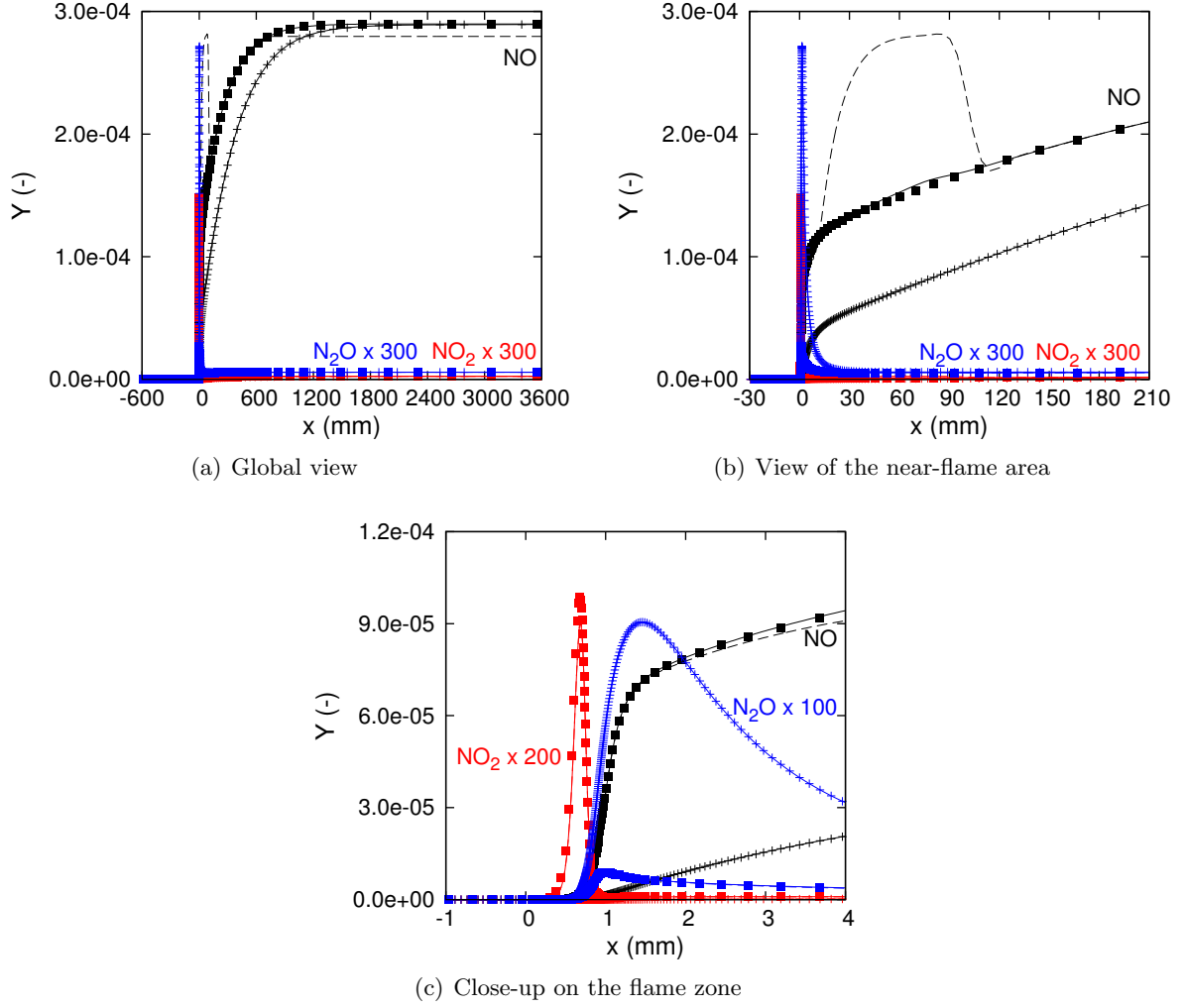


Figure 4.49 – Mass fraction of the main NO_x species (NO , NO_2 and N_2O) in a decane-air flame at $\phi = 1.3$ ($T_u = 500$ K and $P_u = 1$ bar). Three levels of enlargement are displayed. Different scaling factors are used for the sake of readability. Squares : reference flame computed in REGATH using the fully-detailed mechanism for the NO_x . Solid lines with symbols + : HTTC with reduced mechanism for the NO_x . Solid lines and dashed lines : HTTC using the fully-detailed mechanism for the NO_x , with $\alpha = 700$ and $\alpha = 1$, respectively.

for decane flames, with a very good agreement with the reference results. The results of this chapter show that the larger is the kinetic mechanism, the more efficient is HTTC regarding the decrease of the computational cost of the simulation. It suggests that HTTC is well suited for the simulation of kerosene combustion. Some studies [141, 99, 102] have shown that reduced kinetic schemes for the combustion of kerosene should contain at least 15 to 30 species to be able to predict pollutants such as CO, NO and NO₂ with a correct precision. The number of transported species with HTTC is in the same range, but the whole kinetic mechanisms is kept unaltered and taken into account.

All the developments presented in this chapter will be tested in the next chapter dedicated to the simulation of edge flames.

Chapter 5

Simulation of methane-air edge flames

Contents

5.1	Introduction	169
5.1.1	Edge flames	169
5.1.2	Goals of this chapter	171
5.2	Presentation of the simulation setup	173
5.2.1	Computational domain	173
5.2.2	Configuration of the solvers	174
5.2.3	Implementation of the simulations	174
5.3	Flame structure analysis with detailed chemistry (FTC)	175
5.4	Edge flame simulations with FPI	182
5.5	Edge flame simulations with HTTC	185
5.5.1	Sensitivity to the table prolongation method	185
5.5.1.1	Preliminary simulations	185
5.5.1.2	Comparison of the different prolongation methods with detailed chemistry	189
5.5.2	Influence of the control variables	193
5.5.2.1	Progress variable	193
5.5.2.2	Mixture fraction	197
5.5.3	Self-similarity of radical species in triple flames	201
5.6	Conclusion	201

In the previous chapter, HTTC has been successfully used to compute one-dimensional premixed flames. The goal of this chapter is to assess the prediction capabilities of HTTC on a challenging configuration, the edge flame, in comparison to FTC and FPI. First, from a review of literature, the structure of edge flames is described, then the simulation setup is presented. A first analysis of the simulated edge flames, based on the results obtained with the FTC solver, is provided. FPI simulations are briefly presented in the next section, and the final section is dedicated to the simulations performed with the HTTC solver, with an investigation on the impact of the methods used for the table prolongation and for the computation of the control variables (mixture fraction and progress variable).

5.1 Introduction

This chapter focuses on the simulation of edge flames with HTTC. In this first section, a brief description of edge flames, based on various studies found in literature, is provided, before the detailed objectives of this chapter are stated.

5.1.1 Edge flames

In stratified flows, where the equivalence ratio ranges from lean to rich conditions, edge flames can be encountered. In those cases, the reactants are partially premixed before they are burnt. An edge

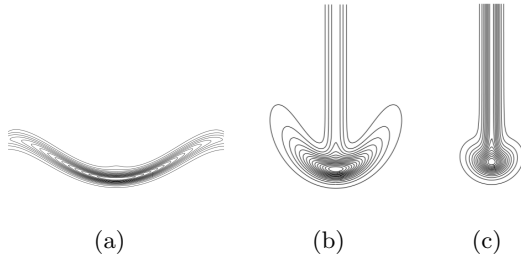


Figure 5.1 – Contours of heat release rate in partially premixed flames, for several intensity of the mixture fraction gradient ∇Z . (a) Small ∇Z : premixed front. (b) Larger ∇Z : tribrachial flame. (c) Very high ∇Z : monobrachial flame. Figures from [18].

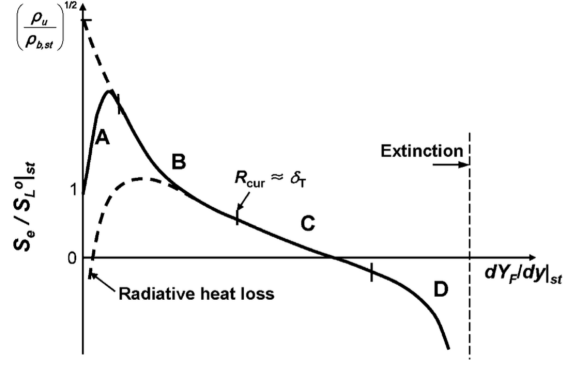


Figure 5.2 – Edge flame propagation speed vs. radial gradient of fuel mass fraction [33]. A, transition from a premixed flame to a tribrachial flame; B, tribrachial flame; C, bibrachial and monobrachial flames; D, near extinction regime.

flame thus consists of a premixed flame front, divided into a lean zone and a rich zone, followed by a trailing diffusion flame, that burns the excess of reactants downstream of the premixed front.

Edge flames may occur in many combustion problems, including flows issuing from jet or slot burners [24]. Beyond experimental configurations, they can also be met in a wide variety of industrial systems and engines, and for example, can be relevant to autoignition in diesel engines and flame propagation in gasoline engines, or even to premixed-charge compression ignition engines (PCCI) [33]. These flames have first been observed by Phillips [171], and afterwards have led to a large number of experimental [109, 110, 125, 173, 180, 238] and numerical studies [21, 53, 98, 117, 178, 192, 239].

Edge flames can exhibit different types of structures (Fig. 5.1), depending on the intensity of the fuel gradient in the unburnt flow (or identically, of the mixture fraction gradient or the equivalence ratio gradient). First note that if this gradient is not strong enough, the reactants are only burnt in a premixed front. The excess of oxidizer in the burnt gases, coming from the lean premixed zone, is too far from the fuel contained in the rich burnt gases, and no diffusion flame can occur (Fig. 5.1(a)). When the gradient is larger however, a trailing diffusion flame appears (Fig. 5.1(b) and 5.3). The edge flame has a tribrachial structure made of a lean premixed wing, a rich premixed wing, and a diffusion trail, all extending from a point called “triple point”. As the gradient increases again, the radius of curvature R_{cur} of the premixed wings decreases. When it becomes comparable to the thermal thickness δ_T , around 1 mm, the tribrachial structure cannot be maintained, and one of the premixed wings disappears to end in a bibrachial structure [33, 232], as shown in Fig. 5.4. For very high values of the mixture fraction gradient, both the lean and rich premixed wings are merged with the trailing diffusion flame, and the edge flame turns into a monobrachial flame (Fig. 5.1(c)).

Besides the changes in the flame structure, the gradient of mixture fraction ∇Z in the radial direction of the flow strongly affects the velocity of propagation of the edge flame. When ∇Z is not too large, typically for tribrachial flames, the streamlines diverge at the triple point, and thus, the local velocity of the flow decreases, while the velocity is larger upstream of the triple point. Consequently, the propagation of the flame tip can be faster than the laminar stoichiometric flame speed S_L^0 , due to this flow redirection effect [33, 180, 192]. Typically, the propagation velocity S_e of the edge flame can reach a value up to $3S_L^0$. This corresponds to the regime A seen in Fig. 5.2, where Y_F is the mass fraction of the fuel, y is the radial direction of the flow, and st refers to stoichiometric conditions. Numerical studies based on direct numerical simulations [53, 98] confirmed this phenomenon and demonstrated that it prevails over other effects such as differential diffusion and strain. Such propagation speeds can

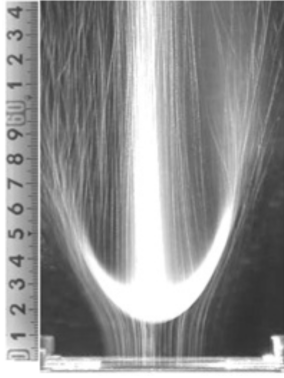


Figure 5.3 – Streamlines in a tribrachial flame, observed with Mie scattering [109].

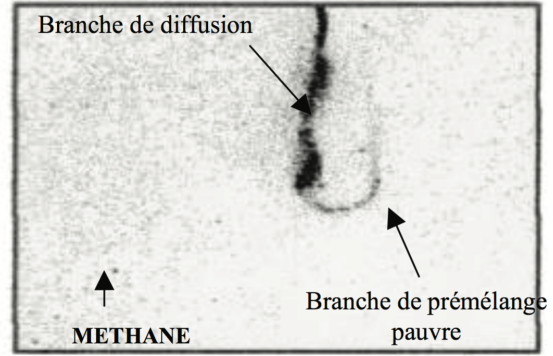


Figure 5.4 – Fluorescence of the radical species CH in a bibrachial flame [232] (figure from the Ph.D thesis of C. Lacour [120]).

also be explained by the transport of radical species (O, H, etc.) from the trailing diffusion flame to the premixed zone, thus increasing the chemical reactivity [7, 82]. This also accounts for the extended flammability limits of edge flames, beyond the usual limits found in premixed flames.

However, when the gradient exceeds a critical value, the decrease of the radius of curvature lessen the effect of the flow redirection, and the propagation speed decreases when the gradient increases (regime B in Fig. 5.2). In the work of Kim *et al.* [108], the inverse of the curvature is roughly proportionnal to the gradient. In this regime, it has been shown that the maximum value of S_e follows the same trend as $S_L^0 \sqrt{\rho_u / \rho_{b,st}}$ [33, 192].

For larger ∇Z , when $R_{cur} \approx \delta_T$, S_e becomes smaller than S_L^0 . This corresponds roughly to the transition from a tribrachial flame to bibrachial and monobrachial flames (regime C in Fig. 5.2). Finally, for very large ∇Z , negative propagation speeds can be observed, before the critical value of the gradients that leads to the extinction.

5.1.2 Goals of this chapter

In the previous chapter, the implementation of the HTTC solver in SiTCom-B has been validated. A good agreement with the reference results coming from the FTC solver has been achieved on 1D premixed flames, with a largely reduced computational cost.

The HTTC method is now confronted with a more challenging configuration, the edge flame. Here, such flames are obtained by simulating the 2D reactive flow of a pure methane jet issuing from a 2 mm wide slot burner at 6 m/s, surrounded by a co-flow of pure air with an axial velocity of 0.4 m/s or 0.6 m/s (Fig. 5.5).

The main goal of this chapter is to assess the capabilities of HTTC to deal with the additional difficulties introduced by the edge flames, especially :

- In the flame tip area, strong values of ∇Z are met. An additional diffusion of the radical species in the Z direction is then likely to happen, in addition to the diffusion in the Y_c direction, already considered in the 1D flames.
- A diffusion tail appears behind the premixed flame front, whereas the HTTC table is based on 1D premixed flames. Moreover, the flammability limits of the premixed flame front are extended in edge flames, compared to the limits in fully premixed flames.

These features of edge flames are, a priori, incompatible with the assumptions made during the table generation, namely the absence of diffusion in the Z direction, because every flames are computed separately with a constant equivalence ratio, and the premixed flame structure. Thus, the aim of

this chapter is to evaluate the impact of those assumptions on simulations done with HTTC, by a comparison with the results coming from a fully transported detailed chemistry solver (FTC), taken as a reference.

Such simulations are usually a severe test case for the classic tabulated chemistry methods (typically FPI and FGM). In the literature, several studies can be found where those methods successfully simulate stratified configurations, but with mixture fractions varying on small ranges included in the premixed flammability limits [50, 179]. Tabulated methods like FPI and FGM are even able to predict temperature and mass fractions of the main species with a reasonable accuracy, in some cases where values of Z beyond the flammability limits are set as inlet conditions. In [222], a methane-air triple flame has been computed with a good agreement with a solution obtained with a detailed chemistry solver. In this simulation, Z is included in $[0, 0.08]$. Even if values of the gradient of Z are not given explicitly in this paper, it can safely be assumed that they are relatively small, since the diffusion trailing flame is barely visible. In [16], Bongers *et al.* use FGM to compute a counterflow laminar methane-air flame where $Z \in [0, 0.11]$, with an error of around 10 % compared to detailed chemistry results (error on the progress variable integrated on the whole computational domain). Moreover in this study, the gradient of mixture fraction, evaluated through a rescaled dissipation rate $\tilde{\chi}$, does not exceed $\tilde{\chi} \approx 2500 \text{ s}^{-1}$, while values around 7000 s^{-1} are met in the simulations presented in this chapter. In this kind of configurations, HTTC, which is by construction at least as accurate as FPI or FGM, is thus expected to predict stratified flames correctly, as long as the gradient of mixture fraction remains relatively small.

However, when the gradient of Z becomes larger, typically in flames stabilized above a pure fuel jet, several studies have shown that FPI and FGM fail when a table built with premixed flames is used [64, 224]. In those configurations, Verhoeven *et al.* [224] work around this issue by using non-premixed flamelets to generate their manifolds, instead of the usual premixed flame database. For this reason, the edge flame configuration has been chosen to assess the prediction capability of HTTC with tables based on premixed flames, in cases featuring strong gradients of mixture fraction, where FPI and FGM are expected to fail. Thus, the results provided by a fully tabulated detailed chemistry solver (FPI) are also compared to FTC and HTTC.

Several simulations have been performed with SiTCom-B, using the FTC, FPI and HTTC solvers. Since the flammability limits are extended in the premixed flame zone of the edge flames, the prolongation of the HTTC table should be decisive. The significance of the prolongation have first been proved, by running a simulation with the HTTC solver based on a table built up without any prolongation. The several prolongation approaches described in Chapter 4 have then been tested.

The influence of the definition of the control variables used to access the table has also been investigated. Two definitions of the progress variable Y_c , based on different combinations of the local species mass fractions, have been tested. To assess the impact of the differential diffusion on the computation of the mass fraction Z , the latter has been either calculated using the local species mass fractions (Bilger's formula), or transported with the assumption of a Lewis number equal to 1.

Two co-flow speeds have been considered (0.4 and 0.6 m/s), to get two different stabilization heights of the flame, and thus two values of the mixture fraction gradient at the flame tip. Indeed, the higher is the co-flow speed, the larger is the flame height, and the lower is ∇Z . The purpose is to assess the impact of the gradient of Z on the global accuracy of HTTC.

In the next section, the simulation setup is presented in detail. In the third section (5.3), a study of the structure of the edge flame, based on the results obtained with the detailed chemistry solver (FTC), is provided to make easier further discussions about the simulations performed with HTTC. The results obtained with the FPI solver are briefly presented in section 5.4. Then, in section 5.5, the edge flames simulated with HTTC are analyzed, with a particular attention on the table prolongation

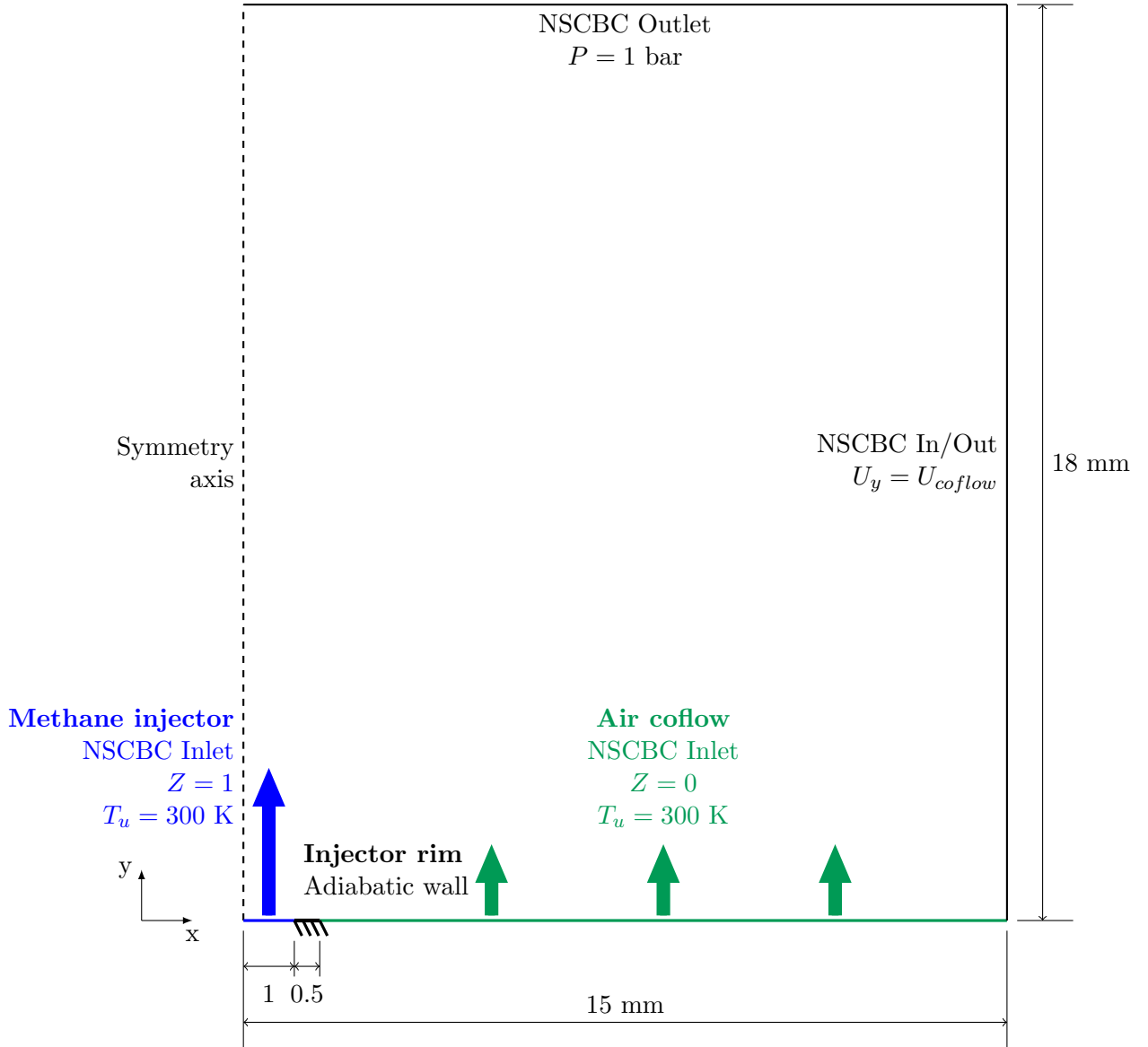


Figure 5.5 – Dimensions and boundary conditions of the simulation domain.

and the computation of the control parameters. A comparison with the results given by FTC and FPI is also provided.

5.2 Presentation of the simulation setup

5.2.1 Computational domain

The simulation setup is a pure methane slot injector surrounded by a co-flow of air, so that a steady laminar edge flame can stabilize close to the burner. The width of the slot is $D_f = 2$ mm, and the thickness of the injector wall is 0.5 mm. The simulated area is drawn in figure 5.5. It consists in a two-dimensional domain, 15 millimeters wide and 18 millimeters high, and is located near the injector outlet, the goal being to simulate the tip of the edge flame. The axial direction is denoted y and the radial direction is denoted x . The domain is uniformly meshed with 50 micrometer cells. The choice of this cell size is based on a mesh sensitivity study, performed on 1D cases (see Appendix A). The following boundary conditions have been set :

- A symmetry condition is set on the left side of the domain, so only one half of the burner is simulated.
- A NSCBC is used for the methane inlet, to limit the reflection of pressure waves. A parabolic velocity profile is used to set the target axial speed $U_{y,f}$ of the fuel inflow :

$$U_{y,f}(x) = U_{y,f}^0 \left[1 - \left(\frac{2x}{D_f} \right)^2 \right] \quad (5.1)$$

with $U_{y,f}^0 = 6$ m/s. The target inlet temperature is $T_f = 300$ K, and the target inlet species mass fractions are $Y_{\text{CH}_4,f} = 1$ and zero for the other species when using FTC and HTTC. For FPI, the mixture fraction is set to $Z_f = 1$ and the progress variable is set to $Y_{c,f} = 0$.

- A NSCBC is used for the air inlet, to limit the reflection of pressure waves. A flat profile is used to set the target axial speed $U_{y,o}$ ($U_{y,o}(x) = U_{y,o}^0 = U_{\text{coflow}}, \forall x$), with $U_{\text{coflow}} = 0.4$ or 0.6 m/s. The target inlet temperature is $T_f = 300$ K, and the target inlet mass fractions are $Y_{\text{O}_2,f} = 0.2331$ and $Y_{\text{N}_2} = 0.7669$ and zero for the other species when using FTC and HTTC. For FPI, the mixture fraction is set to $Z_o = 0$ and the progress variable is set to $Y_{c,o} = 0$.
- An adiabatic wall is added between the fuel and air inlets, to model the injector rim.
- A NSCBC is used for the flow outlet. The target pressure is the atmospheric pressure.
- A special NSCBC (called “In/Out” in SiTCom-B) is used on the right side to limit the radial reflection of pressure waves. Instead of setting a pressure, a target axial velocity $U_{y,r}$ is set to be equal to the velocity of the air inlet, such that $U_{y,r}(y) = U_{y,o}^0, \forall y$.

5.2.2 Configuration of the solvers

The three solvers of SiTCom-B (FTC, FPI and HTTC), presented in Chapter 3, are used in this chapter. The standard version of the HTTC solver is used. The detailed kinetic mechanism of Lindstedt [129] without NOx has been used with the FTC and HTTC solvers, and to generate the FPI tables. For FTC and HTTC, species are transported with variable Lewis numbers. The optimizations presented in section 3.4.4 have been used to speed up the computation of the transport coefficients and the reaction rates of the detailed kinetic mechanism. For FPI, the diffusion coefficient of Y_c is computed using Eq. (3.82), while Z is transported with a unity Lewis number assumption. The reactive flows presented in this chapter are fully laminar, so the DNS equations are solved.

When using HTTC, the self-similarity and mass conservation errors are corrected as explained in Chapter 4. The automatic tool developed during this PhD thesis has been used to generate tables at constant pressure and fresh gas temperature, since the inlet temperature is constant and identical in the methane jet and the co-flow of air, and the pressure is expected to vary on ranges of about 1 Pa. The tabulated species mass fractions are stored using refined uniform Y_c and Z meshes, with $\Delta Y_c = 5 \times 10^{-4}$ and $\Delta Z = 0.001$. Several tables have been built up to assess the behavior of the different prolongation methods presented in Chapter 4.

5.2.3 Implementation of the simulations

Unsteady simulations are run until a steady state of the laminar flow is reached, that is to say when the height of the flame tip and the maximum temperature in the domain become constant. The flame tip is defined as the intersection of the stoichiometric mixture fraction isoline and an isoline of a small value of the progress variable ($Y_c = 0.005$). The time step is computed as explained in section 3.4.2.3 for FTC and HTTC, and 3.4.3.2 for FPI.

As a first step, a “cold” simulation has been run with the FTC with a coflow speed of 0.4 m/s, by

transporting only 3 species (CH_4 , O_2 and N_2) and by disabling the chemical reactions. In order to ignite the cold flow, the simulation has been interrupted and the reactant mixture has been replaced in a large zone above the burner by stoichiometric burnt gases at chemical equilibrium, computed with the 1D flame solver of REGATH. In this zone, the temperature and the mass fractions of all the species of the kinetic mechanism are set equal to their value in the burnt gases computed in the stoichiometric 1D flame. Out of this zone, the temperature and the mass fractions of CH_4 , O_2 and N_2 are left unchanged, while all the other species are set to zero. The aim is to create a reactive zone at the interface of this zone. Afterwards, a first reactive simulation has been run from this initial solution, until a steady edge flame is obtained. In order to minimize the global CPU cost of this study, this first simulation has been performed with the HTTC solver (for a co-flow speed of 0.4 m/s). It is used later on as an initial condition for all the simulations performed with the FTC and HTTC solvers. For FPI, an initial condition is readily obtained by computing the fields of Z and Y_c from the species mass fractions extracted from the HTTC simulation.

5.3 Flame structure analysis with detailed chemistry (FTC)

The structure of the edge flames simulated in this chapter is now analyzed, using the reference results obtained with the FTC solver. The field of heat release rate is displayed in Fig. 5.6(a). The flame exhibits a monobrachial structure, as presented previously (Fig. 5.1(c)). A lean premixed zone, a rich premixed zone and a trailing diffusion flame can be observed (Fig. 5.7(a)), but the premixed wings are merged with the diffusion flame. The maximum of the heat release rate is located nearby the stoichiometric line, at the triple point, where the three parts of the flame meet. The temperature of the flow increases along the stoichiometric line downstream of the premixed front (Fig. 5.6(b)) because of the presence of the diffusion trailing flame. The flame tip stabilizes approximately 2 mm above the burner rim, at a radial location where the velocity of the flow is small enough to allow for the flame stabilization (Fig. 5.6(c)).

The strong values of the mixture fraction gradient (Fig. 5.7(b)) and of the flame curvature (Fig. 5.8) met at the flame tip account for such a monobrachial structure. The radius of curvature of the flame is evaluated on an isoline of heat release (0.05 W/m^3 , which corresponds to the outer isoline in Fig. 5.7). Its minimum value is equal to 0.5 mm, which is smaller than the thermal thickness δ_T , around 1 mm. A monobrachial structure was then expected, according to [33] (see Fig. 5.2), since the simulated flame takes place in the regime C, where bibrachial and monobrachial flames are met. Moreover, the values of the curvature in the vicinity of the flame tip are consistent with observations made in the experiments of Kim *et al.* [108], where curvatures of edge-flames of 1 mm are met in flows featuring gradients of mixture fraction around 50 m^{-1} on the stoichiometric line.

The reactive points of the simulated domain that contribute to the heat release (i.e. where the heat release rate is at least 1% of its maximum on the whole domain) are plotted in a (Y_c, Z) space in figures 5.9 and 5.10. The flammability limits are here defined as the range of equivalence ratio where reactive points are found (as in [21]). Even if this definition of the flammability range is different of what is used in experimental studies, it is clear that the limits are extended in the premixed zone, for an equivalence ratio ranging from 0.15 to 2.73 (Fig. 5.9). The premixed flame extends on large ranges of Y_c and Z , while the reactive points that contribute to the diffusion flame are mainly found between $\phi = 0.6$ and $\phi = 1.4$, and for large values of Y_c , because they are located in the burnt gases downstream of the premixed flame front. The maximum of the heat release rate is found in the premixed area of the flame (Fig. 5.10), but is still significant in the diffusion trailing flame. Finally, reactive points are found beyond the equilibrium line extracted from the 1D premixed flame database (i.e. $Y_{c,eq}(\phi)$ computed in 1D flames), when the progress variable is computed as $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$.

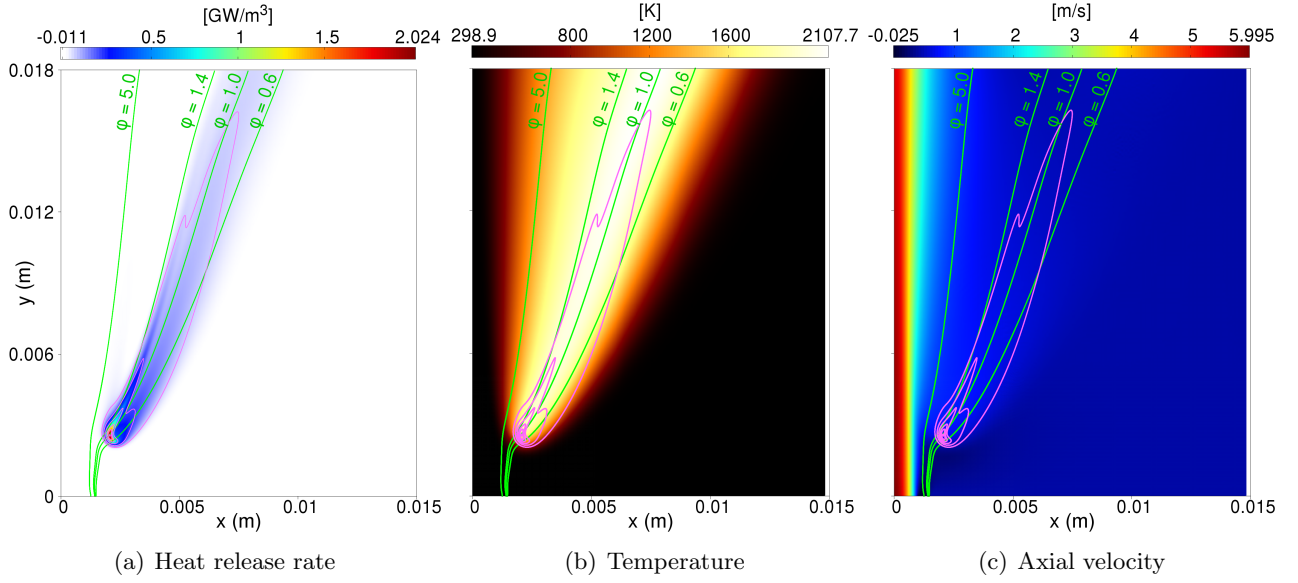


Figure 5.6 – Edge flame simulated with the FTC solver, for a co-flow speed of 0.4 m/s. On each figure, 4 isolines of mixture fraction (in green, corresponding to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0) and 6 isolines of heat release rate (in pink, 0.05, 0.2, 0.5, 1.0, 1.5 and 2.0 GW/m³) have been plotted on top of the 2D field.

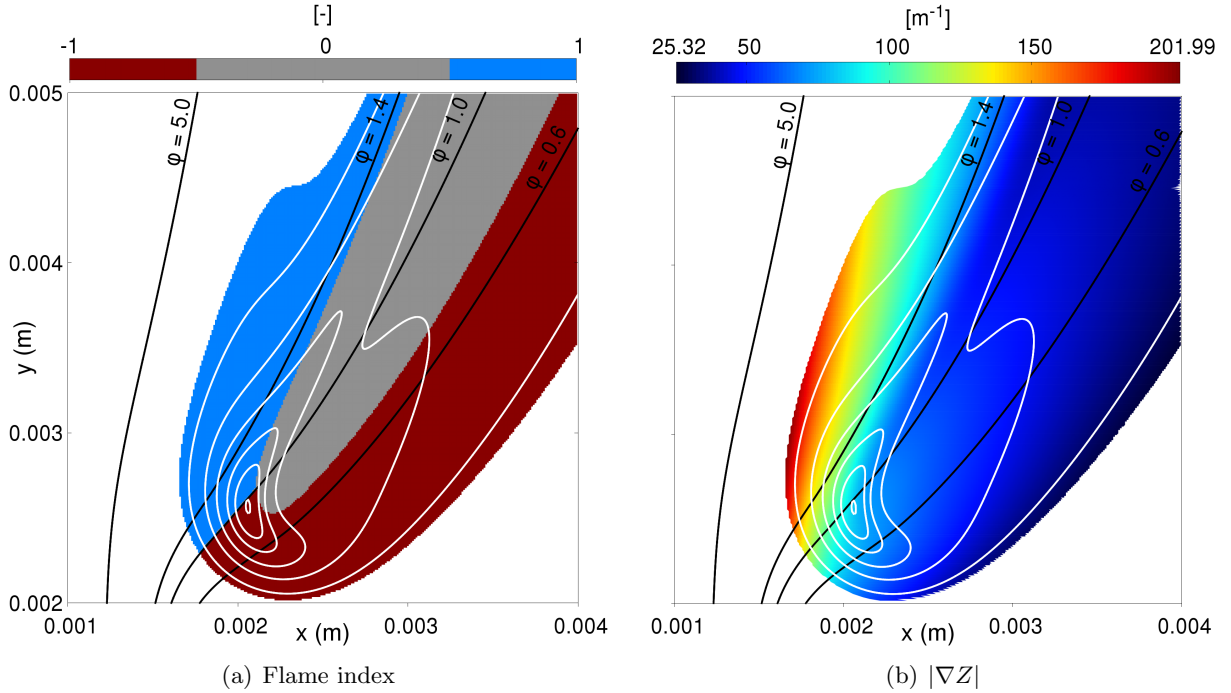


Figure 5.7 – Flame index (calculated with Eq. (3.35)) and norm of mixture fraction gradient in the triple flame simulated with the FTC solver, for a co-flow velocity of 0.4 m/s. Only cells where the heat release rate is larger than 1% of its maximum over the domain are displayed. Isolines of mixture fraction (in black, corresponding to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0) and isolines of heat release rate (in white, 0.05, 0.2, 0.5, 1.0, 1.5 and 2.0 GW/m³) have also been plotted.

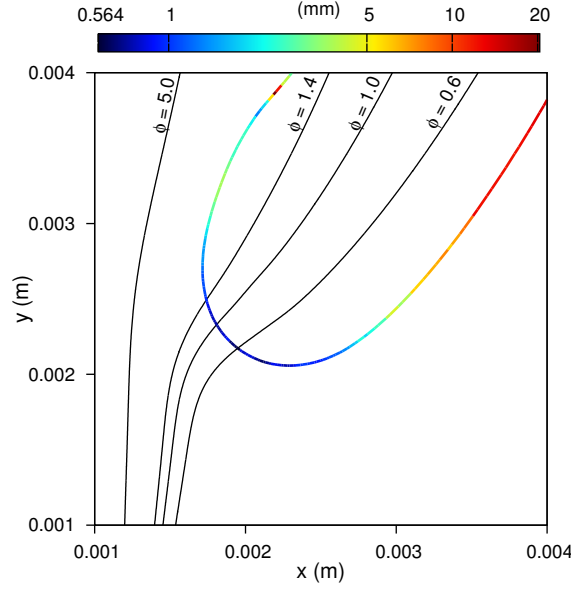


Figure 5.8 – Isolines of heat release rate at 0.05 GW/m^3 colored by its radius of curvature, in the edge flame simulated with the FTC solver, with $U_{\text{coflow}} = 0.4 \text{ m/s}$. Isolines of mixture fraction are plotted in black.

Such a phenomena may be due to the presence of the diffusion tail, and to the diffusion of Y_c from the rich side to the lean side of the flow. Figure 5.11 shows the 2D fields of the variables Z and Y_c , that are used as control parameters for FPI and HTTC. The maximum value of Z (i.e. $Z = 1$) is found near the burner axis, where pure methane is injected. The progress variable Y_c is created in the reactive zones, and diffuses towards the non-reactive zones, where values of Z are close to 0 on the lean side and 1 on the rich side. The choice of the definition of Y_c and its impact on the HTTC method will be discussed later on.

The mass fraction of a few minor species is displayed in figure 5.12. Species like H_2 , which is formed in larger quantities at high equivalence ratios, are produced in rich reactive zones and then diffuse in the burnt gases. However some radical species such as CH , are created and directly consumed in the flame. Those radical species are still present downstream of the premixed flame in thin zones, because of the presence of the diffusion flame. A significant amount of the C_2H_x species (acetylene C_2H_2 , ethylene C_2H_4 and ethane C_2H_6) is found on the rich side of the edge flame, as already observed in [173, 178]. Some studies [7, 236] have shown that elementary reactions involving those species have a particular significance in edge flames. On the lean side of the flow, chemical reactions featuring species containing hydrogen are predominant. In particular, HO_2 is involved in reactions with a large reaction rate [7]. The species OH is mainly found downstream of the premixed flame. It is typically a marker of the diffusion flame in edge flames [82, 173, 199].

The contours of heat release rate plotted in Fig. 5.7 show that the premixed flame front is slanted in relation to the axial direction of the flow. In [108], Kim *et al.* have attributed this phenomenon to the effect of the velocity gradient, which is usually strong in jet flames. As a consequence, the propagation velocity of the flame tip cannot be equal to the axial velocity of the flow at the triple point, which is here assumed to be the intersection between the stoichiometric isoline of Z and the isoline $Y_c = 0.005$. In [108], the propagation velocity is thus assumed to be equal to the velocity U_n normal to the premixed front, calculated at the triple point by correcting the axial velocity with the slanted angle of the premixed front. In this work, the velocity U_n is calculated from the velocity vector

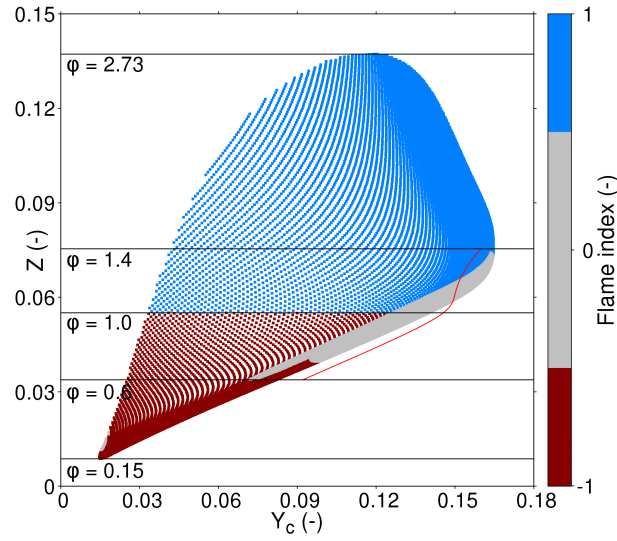


Figure 5.9 – Scatter plot in a (Y_c, Z) space of the points of the FTC simulation with a heat release rate larger than 1% of its maximum over the whole domain, colored by the flame index (Eq. (3.35)). The co-flow speed is 0.4 m/s. The red line is the equilibrium extracted from the 1D database.

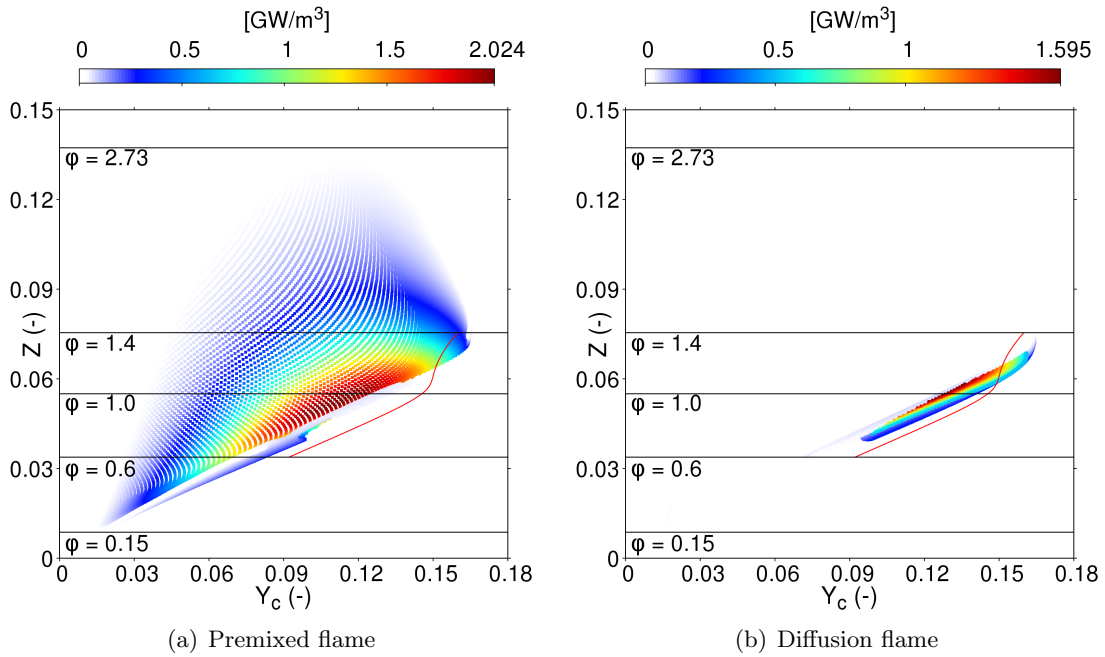


Figure 5.10 – Scatter plot in a (Y_c, Z) space of the points of the FTC simulation with a heat release rate larger than 1% of its maximum over the whole domain, colored by the heat release rate. On the left, points with a flame index equal to -1 or 1 are displayed (premixed flame), while on the right, only points with a flame index equal to 0 (diffusion flame) are plotted. The red line is the equilibrium extracted from the 1D database. The co-flow speed is 0.4 m/s.

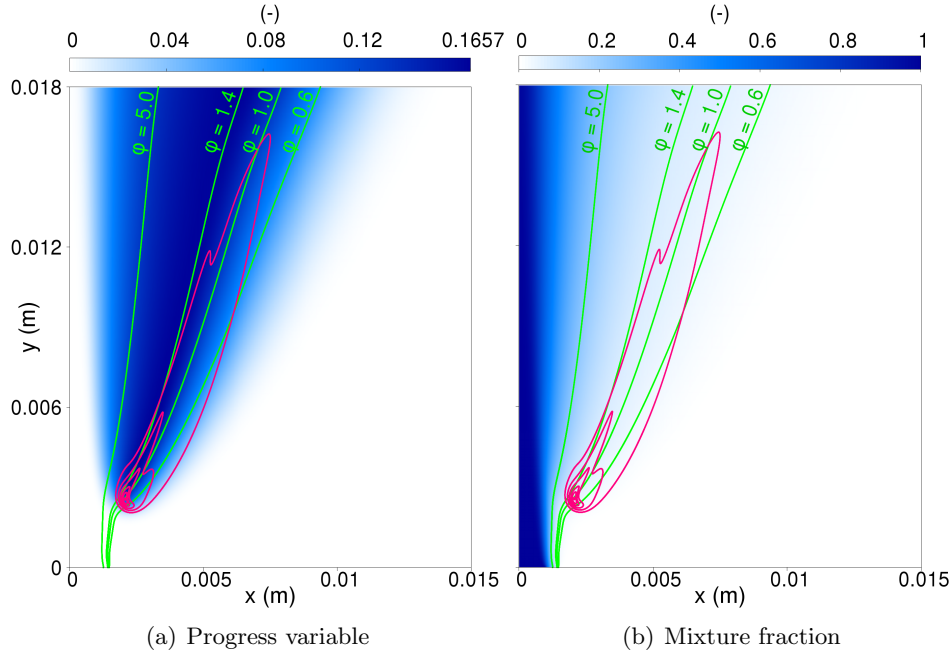


Figure 5.11 – Mixture fraction Z , locally computed using Bilger’s definition, and progress variable $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$, in the triple flame simulated with the FTC solver, for a co-flow speed of 0.4 m/s. Isolines of mixture fraction (in green, corresponding to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0) and isolines of heat release rate (in pink, 0.05, 0.2, 0.5, 1.0, 1.5 and 2.0 GW/m³) have been plotted.

U at the triple point, using the gradient of Y_c to determine the normal direction to the premixed front:

$$U_n = \frac{\nabla Y_c}{|\nabla Y_c|} \cdot U \quad (5.2)$$

For a velocity of the co-flow of 0.4 m/s, $U_n = 0.209$ m/s at the flame tip, while the 1D laminar flame speed at $\phi = 1$ computed with REGATH, is $S_L^0 = 0.367$ m/s. As explained previously, this smaller propagation speed is due to the strong gradient of mixture fraction at the flame tip.

The impact of the velocity of the co-flow of air (U_{coflow}) on the flame structure and stabilization height is now discussed. For $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s, a monobranchial structure, with the premixed wings merged with the diffusion trailing flame, is maintained (Fig. 5.13(a)), because a strong gradient of mixture fraction is still met at the flame tip (Fig. 5.13(b)), even if the gradient is smaller than the value at $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s. As a consequence, the flame propagation speed computed with Eq. (5.2) is larger than its value with $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s (0.292 m/s for $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s vs. 0.209 m/s for $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s). Because of the large value of ∇Z at the flame tip, the propagation speed is still smaller than S_L^0 . With $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s however, the stabilization height of the flame is larger than at $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s (8 mm instead of 2 mm, see Fig. 5.14). Lee *et al.* [126] have shown that, for strong jet conditions (velocity of the jet much larger than U_{coflow}), a change in the velocity of the co-flow has a much more appreciable impact on the stabilization height of the flame than a change in the velocity of the fuel jet. In the simulations presented here, strong jet conditions are encountered, since the velocity of the fuel jet is approximately ten times larger than the velocity of the co-flow of air ($U_{y,f}^0 = 6$ m/s vs. $U_{\text{coflow}} = 0.4$ or 0.6 m/s). This explains why the stabilization is done higher with $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s.

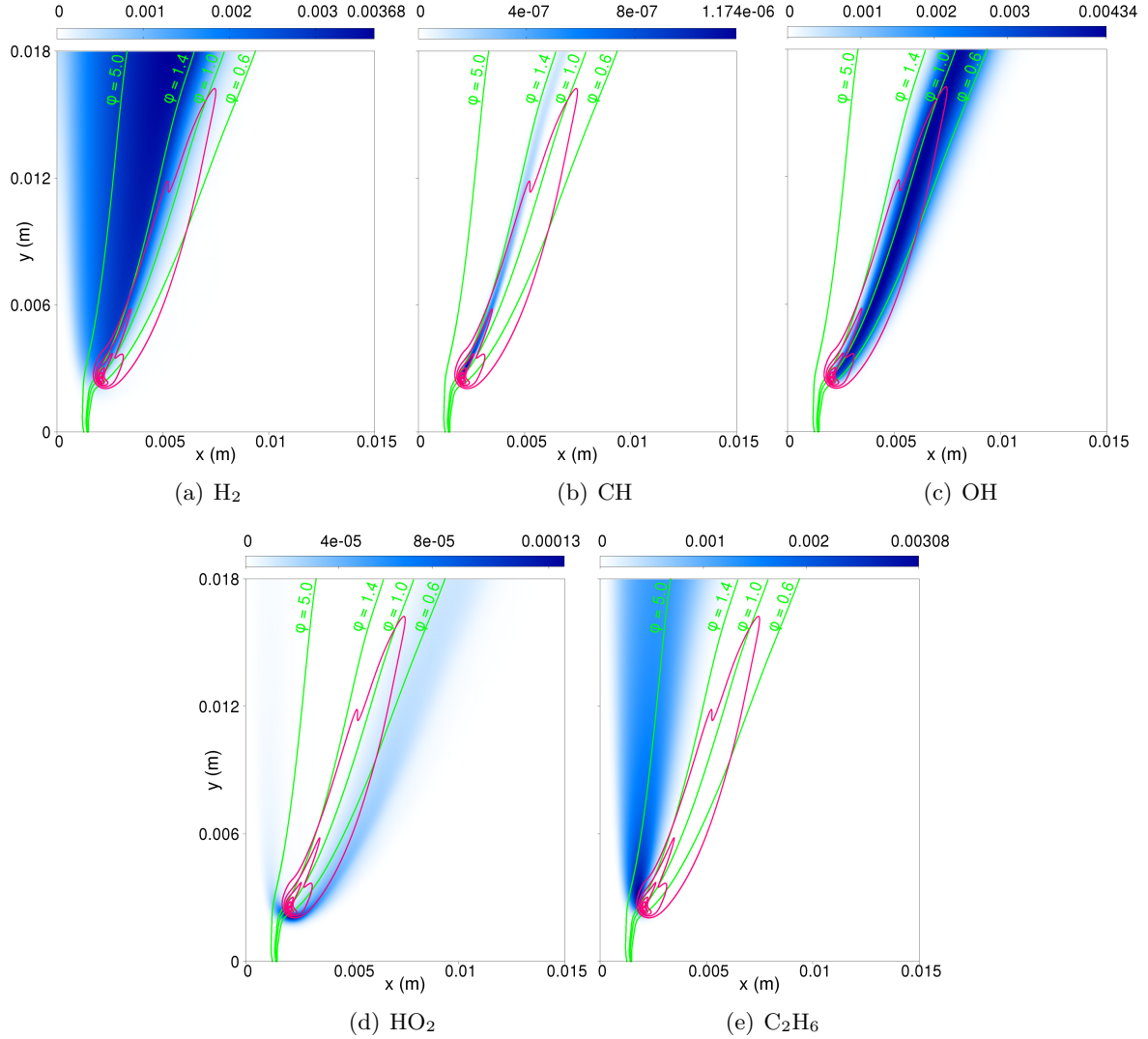


Figure 5.12 – Mass fractions of a few minor and radical species in the triple flame simulated with the FTC solver, for a co-flow speed of 0.4 m/s. Isolines of mixture fraction (in green, corresponding to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0) and heat release rate (in pink, 0.05, 0.2, 0.5, 1.0, 1.5 and 2.0 GW/m^3) have been plotted.

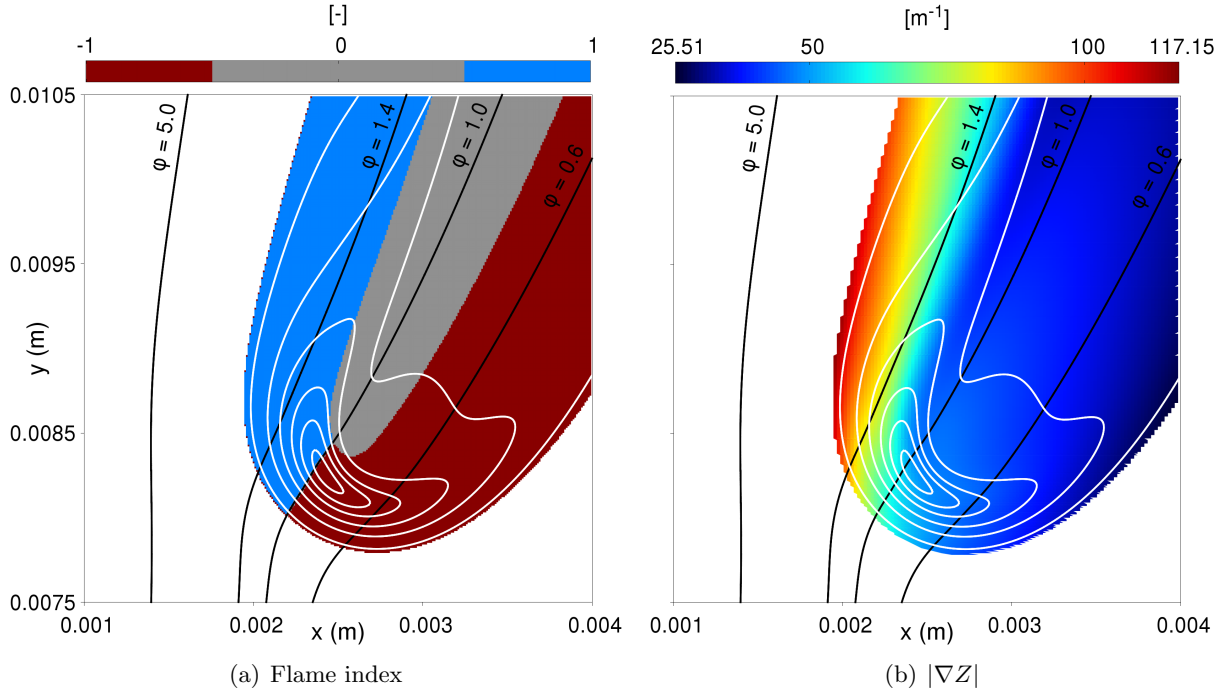


Figure 5.13 – Flame index (calculated with Eq. (3.35)) and norm of mixture fraction gradient in the triple flame simulated with the FTC solver, for a co-flow velocity of 0.6 m/s. Only cells where the heat release rate is larger than 1% of its maximum over the domain are displayed. Isolines of mixture fraction (in black, corresponding to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0) and isolines of heat release rate (in white, 0.05, 0.2, 0.5, 1.0, 1.5 and 2.0 GW/m^3) have also been plotted.

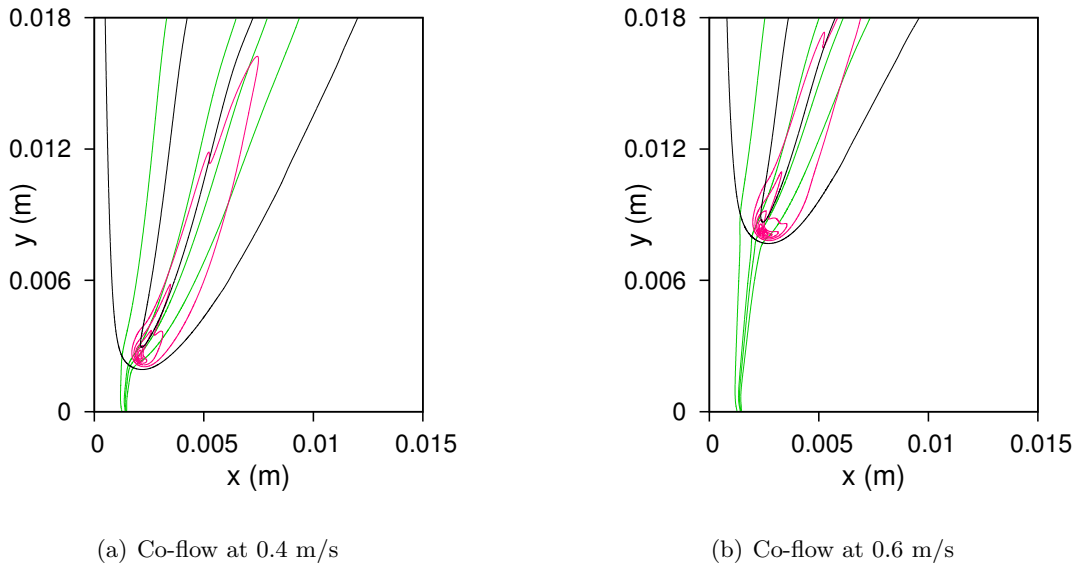
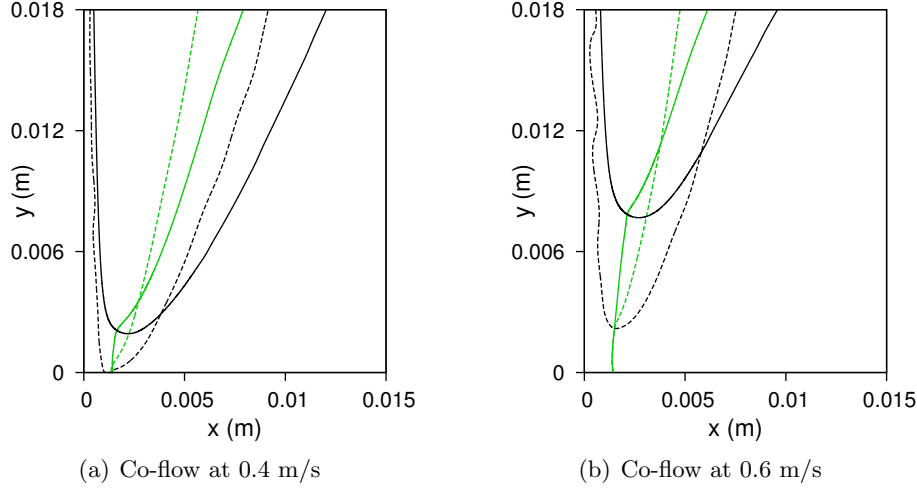


Figure 5.14 – Isolines of mixture fraction isolines (in green, corresponding from right to left to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0), heat release rate (in pink, 0.05, 0.2, 0.5, 1.0, 1.5 and 2.0 GW/m^3) and progress variable $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ (in black, 0.005 and 0.15), in the edge flames simulated with the FTC solver.

Name/ solver	Co-flow velocity	Prolong. method	Self-sim.	Z	Y_c
FPI-04	0.4 m/s	Eq. (3.60)	No	Transported	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$
FPI-06	0.6 m/s	Eq. (3.60)	No	Transported	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$

Table 5.1 – Summary of the simulations run with the FPI solver.

Figure 5.15 – Isolines of stoichiometric mixture fraction (green) and of progress variable ($Y_c = 0.005$, black), in the flames computed with FTC (solid lines) and FPI (dashed lines), for the two co-flow speeds.

5.4 Edge flame simulations with FPI

The results of the simulations performed with the FPI solver are now analyzed. The main characteristics of those simulations are gathered in Tab. 5.1.

In figure 5.15, a stoichiometric isoline of Z and an isoline of progress variable for $Y_c = 0.005$ are plotted, to visualize the shape and the stabilization height of the edge flames computed with FPI, for $U_{\text{coflow}} = 0.4$ and 0.6 m/s. The same isolines computed with FTC are also provided, as a reference. The intersection of the isolines of Z and Y_c is used to locate the flame tip. The propagation speed at the flame tip, still computed with Eq. (5.2), and the stabilization height of the tip are gathered in Tab. 5.2.

With $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s, the FPI method predicts that the flame is attached to the burner wall (supposed to be adiabatic in this study). In this case, the propagation speed cannot be evaluated. For $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s, the flame stabilizes much closer to the burner than with FTC. The propagation speed is indeed higher than the reference speed, and is nearly equal to the stoichiometric 1D flame speed computed with REGATH (0.367 m/s). With FPI, the whole modeling of the chemistry is included in the table, and consequently, only depends on the local values of Z and Y_c during the simulation. The impact of ∇Z on the propagation speed, observed in experiments and in the previous simulations performed with the FTC solver, is thus totally ignored when using the FPI method, because the FPI table is generated without considering any fluxes in the Z direction.

Radial profiles of temperature and of mass fractions of the major products (CO , CO_2 and H_2O) and of OH , have been extracted from the FPI simulations at three different heights above the burner, and plotted along with the reference profiles obtained with FTC. In order to allow for the comparison

Simulation	Height and velocity at flame tip	
	y_0 (mm)	U_n (m/s)
Coflow at 0.4 m/s		
FTC	1.99	0.209
FPI	0	-
Coflow at 0.6 m/s		
FTC	7.76	0.292
FPI	2.19	0.358

Table 5.2 – Height and propagation velocity at flame tip, in the flames computed with FTC and FPI, for the two co-flow speeds.

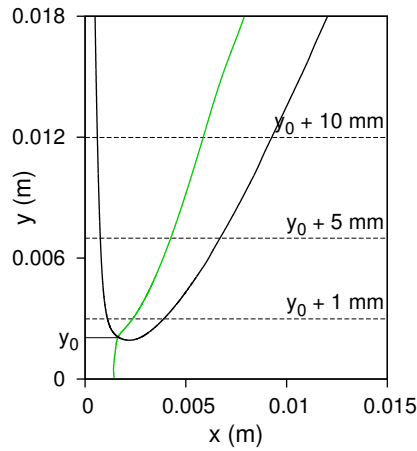


Figure 5.16 – Position of the three radial profiles relative to the flame tip, located at a height y_0 .

of the profiles, in spite of the differences in the stabilization height of the flames predicted by FPI and FTC, the heights of the radial profiles are relative to the height of the tip, denoted y_0 . The profiles are extracted at $y_0 + 1$ mm, $y_0 + 5$ mm and $y_0 + 10$ mm (Fig. 5.16).

The profiles are plotted in figure 5.17 for $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s. At the three heights, the maximum values of the temperature and of the species mass fractions are close to the reference, except for CO which is overestimated by a factor around 2. However, the width of the profiles is smaller, as it was suggested already by the contour of Y_c plotted in Fig. 5.15. The source term of Y_c is abruptly set to zero for $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$ in the FPI table, and thus the flame simulated with FPI does not benefit from extended flammability limits. Moreover, the diffusion coefficient D_{Y_c} is tabulated and thus only depends on the local value of Z (and Y_c), but is independent of the local value of ∇Z . This can explain that the width of the zone containing the burnt gases is smaller with FPI. Similar results are observed with $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s. They are presented in Fig. B.1 in Appendix B.

Some authors have tried to alleviate this issue inherent to tabulation methods. In [158], Nguyen *et al.* proposed a multi-dimensional tabulation approach (Multidimensional Flamelet-generated Manifold) that takes the fluxes in the Z direction into account during the generation of the manifold, in order to get a better modeling of the impact of the gradient of Z in the simulations. In [69], Franzelli *et al.* used strained partially premixed counterflow flames to build three-dimensional FPI tables, parameterized by a progress variable, a mixture fraction and the scalar dissipation rate of the mixture fraction.

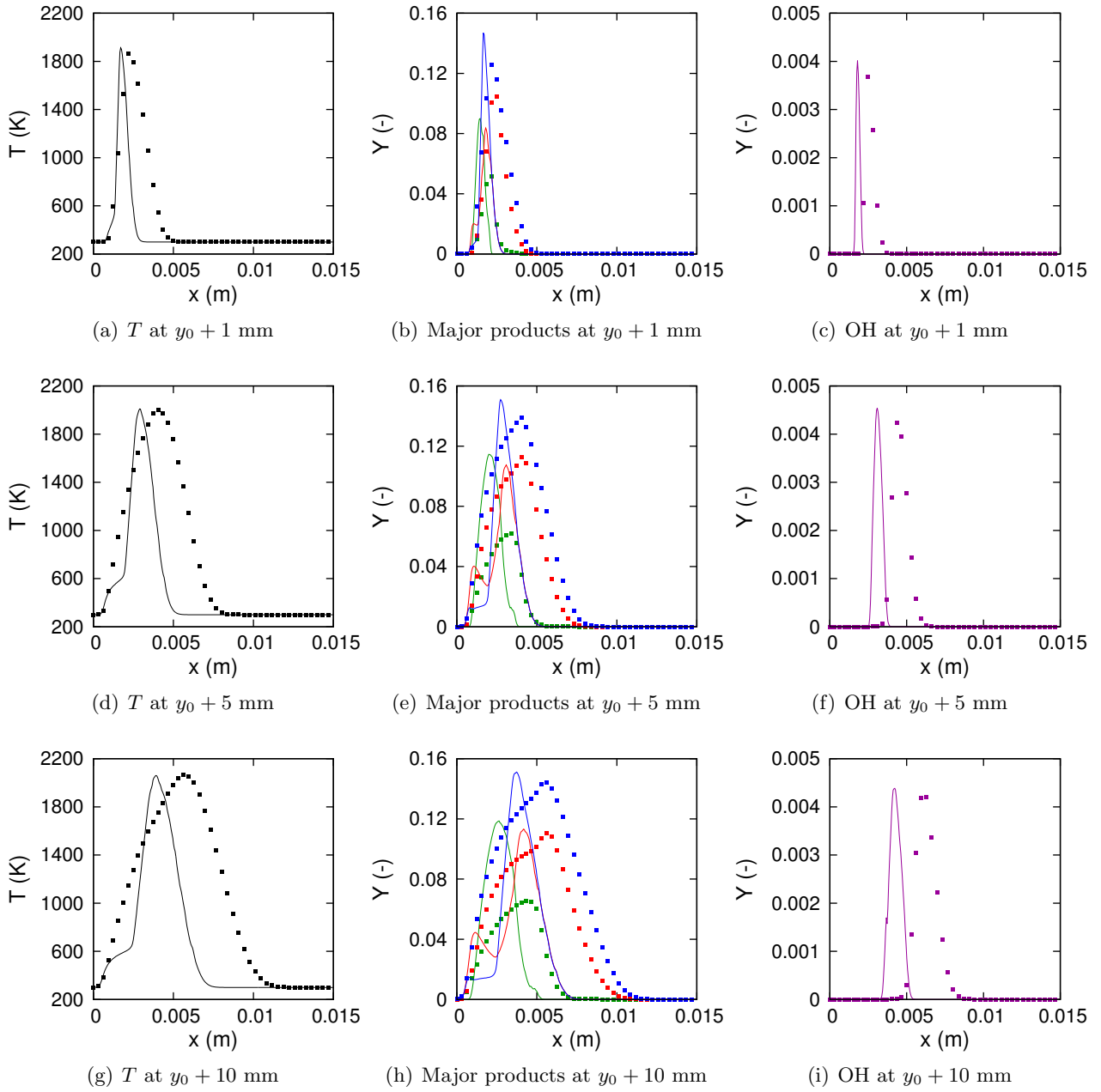


Figure 5.17 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO_2 in red and $\text{H}_2\text{O} \times 1.2$ in blue) and OH (purple) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and FPI (lines) simulations, with a co-flow speed of 0.4 m/s.

Name/ solver	Co-flow velocity	Prolong. method	Self-sim.	Z	Y_c	N_m
HTTC0	0.4 m/s	P0	Yes	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	16
HTTC1.1	0.4 m/s	P2a	No	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	16
HTTC1.2	0.4 m/s	P2a lin.	No	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	16

Table 5.3 – Summary of the simulations run with the HTTC solver in section 5.5.1.1. The number of tabulated species is denoted N_m .

5.5 Edge flame simulations with HTTC

The edge flames simulated with HTTC are now presented. The results are compared with the reference computed with the fully-transported chemistry solver (FTC), to evaluate the performances and the accuracy of HTTC. Two particular points are investigated: the impact of the prolongation method used to extend the tables, and the significance of the computation of the control variables (Y_c and Z).

5.5.1 Sensitivity to the table prolongation method

In this first section, the impact of the prolongation of HTTC tables in the simulation of edge flames is investigated, by comparing simulations performed with tables based on the three methods presented in Chapter 4 (section 4.3.4), denoted P1, P2a and P2b below, plus a simulation done with a table using no prolongation (denoted P0). As a reminder, the prolongation methods used for the generation of the HTTC tables are as follows:

1. *Method P0* (no prolongation). A 1D premixed flame database is generated for $\phi \in [0.6, 1.4]$, i.e. within flammability limits. The tabulated mass fractions are set to zero for $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$.
2. *Method P1* (see section 4.3.4.1). A 1D premixed flame database is generated for $\phi \in [0.5, 5]$. The tabulated mass fractions are set to zero for $\phi < 0.5$ and $\phi > 5$.
3. *Method P2a* (see section 4.3.4.2 submodel 1). A 1D premixed flame database is generated for $\phi \in [0.6, 1.4]$, i.e. within flammability limits. For each species, the mass fractions are extrapolated in the Z direction for $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$, before the self-similarity procedure is applied.
4. *Method P2b* (see section 4.3.4.2 submodel 2). A 1D premixed flame database is generated for $\phi \in [0.6, 1.4]$, i.e. within flammability limits. For each species, the self-similarity procedure is applied. The reduction parameters are extrapolated for $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$, and a single reduced mass fraction is stored (for $\phi = 1$).

In this section, the progress variable is defined as $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ and Z is computed locally using Bilger's formula. The velocity of the co-flow of air is set to $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s.

5.5.1.1 Preliminary simulations

For the sake of clarity, the different simulations performed in this paragraph are gathered in Tab. 5.3. First, a simulation (case HTTC0) is run with a table built up with a 1D premixed flame database generated for $\phi \in [0.6, 1.4]$ (i.e. the flammability limits). Out of this range, the mass fractions of the tabulated species are set to zero (approach P0). With this table, the mass fraction fields of most of the tabulated radical species are abruptly clipped to zero when crossing the isolines $\phi = 0.6$

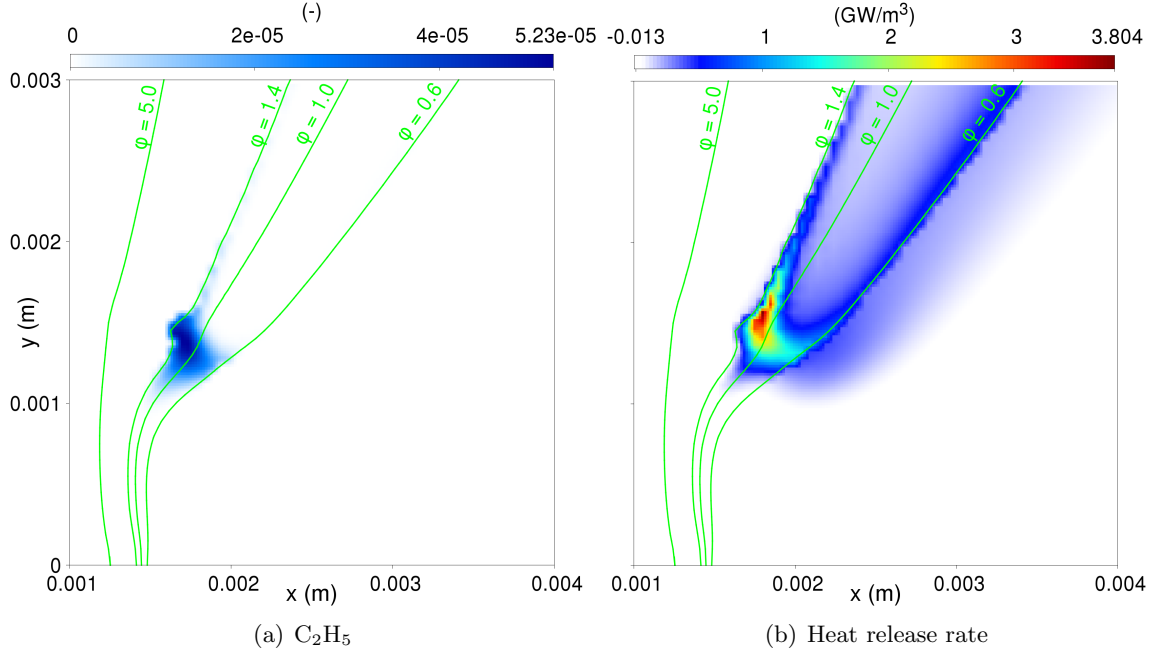


Figure 5.18 – Mass fraction of C_2H_5 and heat release rate in the edge flame simulated with HTTC, without using any table prolongation, for a co-flow speed of 0.4 m/s (simu. HTTC0.1). Isolines of mixture fraction (corresponding to $\phi = 0.6, 1.0, 1.4$ and 5.0) are also displayed.

and $\phi = 1.4$ (Fig. 5.18(a)). As a consequence, many chemical reactions cannot happen when $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$, and a part of the heat release is missing. On the rich side, the heat release is totally interrupted, while on the lean side, a small amount of heat is still released (Fig. 5.18(b)). Indeed a few reactions occur with the remaining transported species, involving oxygen and hydrogen only, such as O , H , OH , O_2 and HO_2 . Moreover, this abrupt clipping causes strong discontinuities in the heat release rate, which severely affects several other variables (temperature, pressure, etc.), and finally lead to the abortion of the code.

This first result confirms that a prolongation of the table beyond the flammability limits is essential, and thus the prolongation methods listed previously are investigated. In the case of the methods P2a and P2b, the selection of the tabulated species is based on a 1D flame database generated for $\phi \in [0.6, 1.4]$. However in the reference edge flame simulated with the FTC solver, some species are produced in the reactive areas of the flow and diffuse on a very large range of Z , much larger than the flammability range. For example, significant amounts of C_2H_2 can be found for values of Z up to almost 1 (Fig. 5.19). A similar observation can be made for C_2H_4 , C_2H_6 , CH_2CO and CH_3 , i.e. tabulated species having the largest mass fractions (order of magnitude of 10^{-3} and 10^{-4} vs. 10^{-5} to 10^{-12} for the other tabulated species). As a consequence, the mass fractions of those 5 species cannot be predicted correctly with P2a and P2b in rich areas of the flow, since their concentration in the table rapidly go back to zero for values of Z close to 0.10, i.e. ϕ close to 2 (see previous chapter, Fig. 4.26 for the mass fraction of C_2H_2 extrapolated with P2a and Fig. 4.28 with P2b). However, the areas where Z is far beyond the flammability limits do not contribute to the heat release. Thus, those species could still be tabulated if they are not among the target output variables of the simulation, in order to minimize the computation cost as much as possible. In the case of the method P1, such species are not retained as tabulated species, because in the flame database generated for $\phi \in [0.5, 5]$, their mass fraction does not go back to zero at the outlet boundary of some rich flames.

A similar issue is found when extrapolating on the lean side of the table (for $\phi < 0.6$). As a first

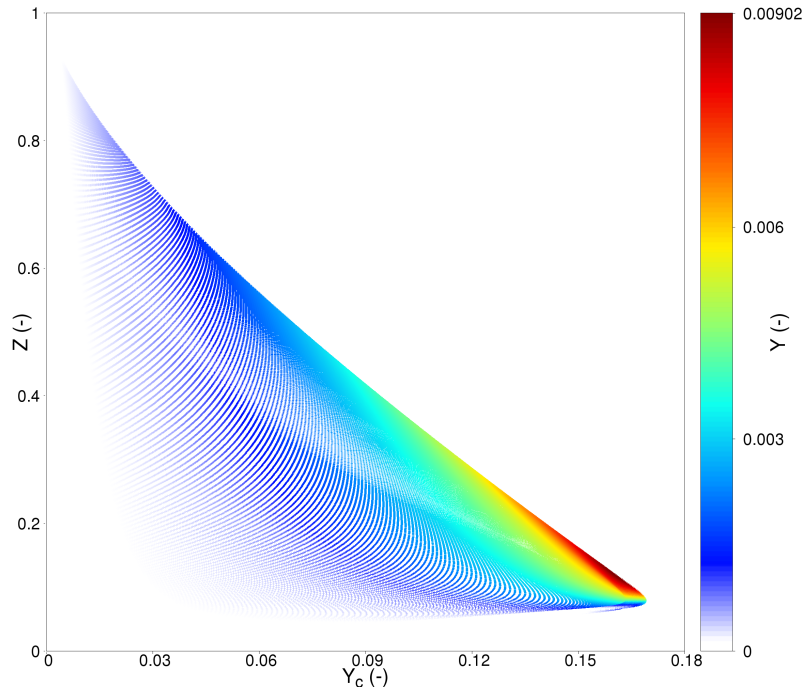


Figure 5.19 – Scatter plot in a (Y_c, Z) space of the FTC simulation, colored by the mass fraction of C_2H_2 . The co-flow speed is 0.4 m/s.

try, gaussian functions have been used in the table generation tool, as presented in Chapter 4. In figure 5.20, a few contours of C_2H_6 mass fraction, extracted from the HTTC tables prolonged with methods P2a and P2b using gaussian functions, have been plotted on top of a scatter plot of the FTC reference simulation in a (Y_c, Z) space, colored by the mass fraction of C_2H_6 . This figure shows that for lean equivalence ratios ($\phi < 0.6$), the HTTC tables predict non-zero values of the mass fraction for $Y_c \in [0.03, 0.06]$, in a zone where the mass fraction of C_2H_6 should actually be zero, according to the reference simulation. The 5 previously mentioned species, plus CH_3O , are concerned by this issue. A table prolonged with P2a using gaussian functions on the lean side has been tested in the simulation denoted HTTC1.1. At this stage, all the mass fraction profiles are stored in the table without using their self-similarity property. The consequence of this modeling is the unwanted presence (or abnormal concentrations) of radical species on the lean side of the flow (Fig. 5.21(a)), which strongly react and release a large amount of heat in zones that should not be reactive (Fig. 5.21(b)). For comparison, the correct mass fraction field of C_2H_6 extracted the reference simulation is displayed in Fig. 5.12(e). This issue leads to the abortion of the simulation.

Hence, as a second try, unlike the work presented in Chapter 4, the gaussian functions used with method P2a have been replaced by simple linear functions on the lean side of the table only, in order to get a faster decrease of the mass fractions to zero, as shown for example on the contours of C_2H_6 (Fig 5.20). With linear extrapolations on the lean side, there is no abnormal heat release on the lean side, and a steady state can be reached in the simulation performed with the table based on method P2a (case HTTC1.2). However, the results are still not satisfying, since the temperature, the mass fractions of CO and the mass fractions of the minor species are totally underestimated in comparison with the reference, as shown in radial profiles plotted in Fig. 5.22, 10 mm above the flame tip. Additional radial profiles plotted at $y_0 + 1$ mm and $y_0 + 5$ mm can be found in Appendix B (Fig. B.2 and B.3).

The search for a better extrapolation function has not been led further. For the subsequent simulations, the 6 radical species mentioned previously (C_2H_2 , C_2H_4 , C_2H_6 , CH_2CO , CH_3 and CH_3O)

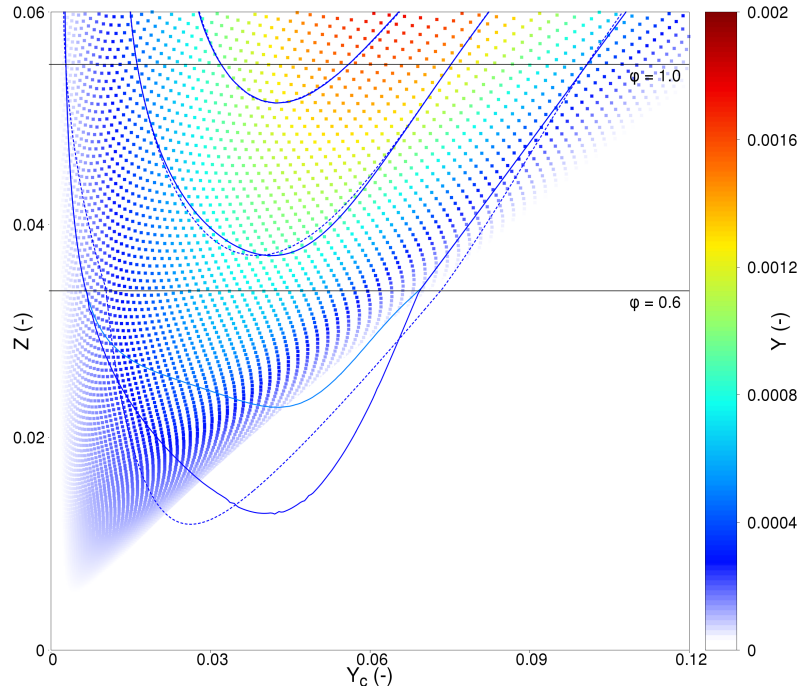


Figure 5.20 – Scatter plot in a (Y_c, Z) space of the FTC simulation, colored by the mass fraction of C_2H_6 . The co-flow speed is 0.4 m/s. Isolines of mass fraction of C_2H_6 ($Y = 1.0 \times 10^{-4}$, 8.0×10^{-4} , 1.5×10^{-3}) extracted from the HTTC tables, prolonged using different methods, are also displayed.

— P2a using gaussian functions, — P2a using linear functions, - - - P2b using gaussian functions.

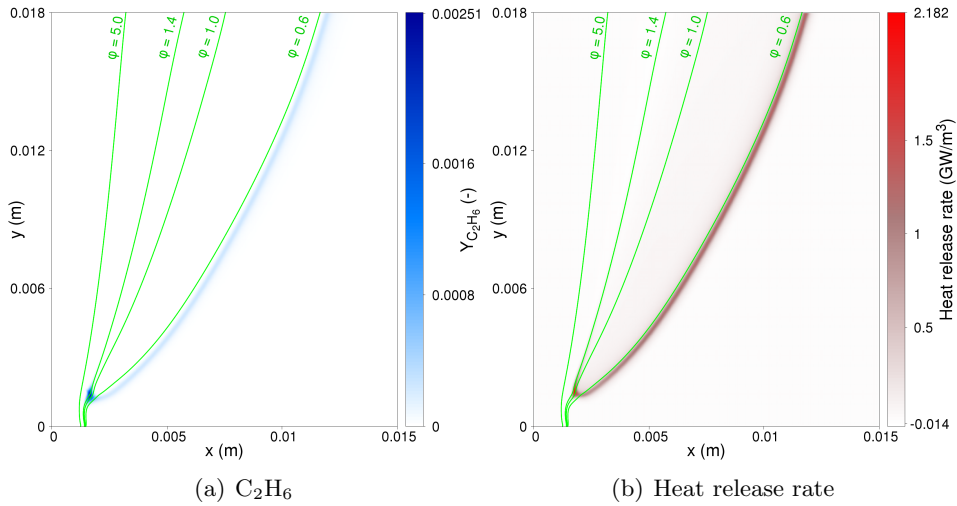


Figure 5.21 – Mass fraction of C_2H_6 and heat release rate in the triple flame simulated using HTTC with a table prolonged with method P2a, using gaussian functions, both on lean and rich sides (simu. HTTC1.1). Isolines of mixture fraction (corresponding to $\phi = 0.6$, 1.0, 1.4 and 5.0) are also displayed.

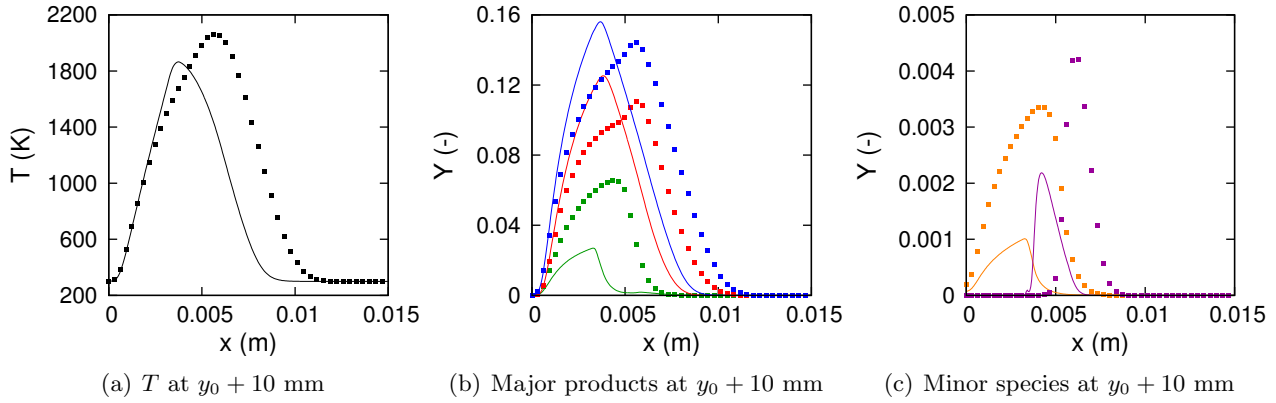


Figure 5.22 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO_2 in red and $\text{H}_2\text{O} \times 1.2$ in blue) and minor species (OH in purple and H_2 in orange) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and HTTC (lines) simulations, using a table prolonged with method P2a, using linear functions on the lean side (simu HTTC1.2).

The velocity of the co-flow speed is 0.4 m/s.

Name/ solver	Co-flow velocity	Prolong. method	Self-sim.	Z	Y_c	N_m
HTTC2.1	0.4 m/s	P1	Yes	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	9
HTTC2.2	0.4 m/s	P2a	No	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	10
HTTC2.3	0.4 m/s	P2a	Yes	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	10
HTTC2.4	0.4 m/s	P2b	Yes	Bilger	$Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$	10

Table 5.4 – Summary of the simulations run with the HTTC solver in section 5.5.1.2. The number of tabulated species is denoted N_m .

have been removed from the tables prolonged with the methods P2a and P2b, and are transported instead. The outcome is tables made of 10 species instead of the initial 16 species. Gaussian functions are used to extrapolate the tabulated species mass fractions both on the lean and rich sides of the tables.

5.5.1.2 Comparison of the different prolongation methods with detailed chemistry

The different simulations performed in this paragraph are gathered in Tab. 5.4. The results of the HTTC simulations obtained with the three prolongation methods P1 (HTTC2.1), P2a (HTTC2.2 and HTTC2.3) and P2b (HTTC2.4) are now compared to the reference FTC results, in order to evaluate the capabilities of HTTC to simulate edge flames, and to select the best prolongation method.

Note that, so far, the tables extrapolated with the method P2a have been built without making use of the self-similarity. Enabling the self-similarity to build up the table led to the failure of the simulation (HTTC2.3). Indeed, when the flame database is extrapolated in the Z direction, the mass fraction profiles $Y_k(Y_c)$ artificially built for $\phi < 0.6$ and $\phi > 1.4$ are not self-similar with the “real” profiles extracted from the flame database generated for $\phi \in [0.6, 1.4]$. The extrapolated zone is indeed entirely based on a mathematical procedure, without considering any physical aspect. The shape of the reduced profiles in this zone is different, and consequently, they are not properly superimposed with the profiles for $\phi \in [0.6, 1.4]$ and especially with the stoichiometric reduced profile, which is the only profile stored in the table when the self-similarity is enabled. During the simulation, the profiles

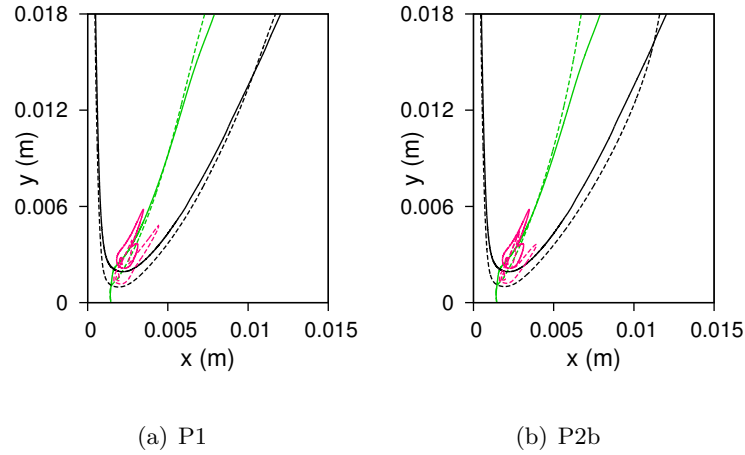


Figure 5.23 – Isolines of stoichiometric mixture fraction (green) and of progress variable ($Y_c = 0.005$, black), in the flames computed with FTC (solid lines) and HTTC (dashed lines) using the prolongation methods P1 (simu HTTC2.1) and P2b (HTTC2.4).

Solver	Height and velocity at flame tip	
	y_0 (mm)	U_n (m/s)
Co-flow at 0.4 m/s		
FTC	1.99	0.209
HTTC		
P1 (HTTC2.1)	0.89	0.215
P2b (HTTC2.4)	1.00	0.225

Table 5.5 – Height and propagation velocity at flame tip, in the flames computed with FTC and HTTC.

reconstructed from the stoichiometric profile and the reduction parameters are erroneous and give wrong values of the mass fractions.

Raw tables built without self-similarity are out of the framework of HTTC. In this study, the table has still a reasonable size in spite of the absence of self-similarity, because the unburnt temperature and pressure conditions are fixed. However, this issue could lead to an unacceptable size of the table if several points were needed in the direction of the temperature or the pressure. For this reason, the prolongation method P2a will not be investigated further in this section. Results of the simulation HTTC2.2 performed using a raw table can still be found in Appendix B.

The two HTTC simulations performed with fully self-similar tables, prolonged with the two remaining prolongation methods P1 and P2b, are now presented. They both lead to a similar flame structure (Fig. 5.23), very close to the reference flame simulated with the FTC solver. With HTTC though, the flame stabilizes 1 mm closer to the injector wall, because of a slightly higher propagation speed (Tab. 5.5). A very good agreement with the reference temperature and mass fractions, compared on radial profiles at different heights relatively to the flame tip, is obtained (Fig. 5.24). The agreement is good both in the premixed zone (at height $y_0 + 1$ mm) and in the burnt gases where the diffusion flame shows up (at heights $y_0 + 5$ mm and $y_0 + 10$ mm).

In addition to the comparison of the main variables of the flame, the contribution of the tabulated radical species is now analyzed and compared with the reference flame, through the example of the

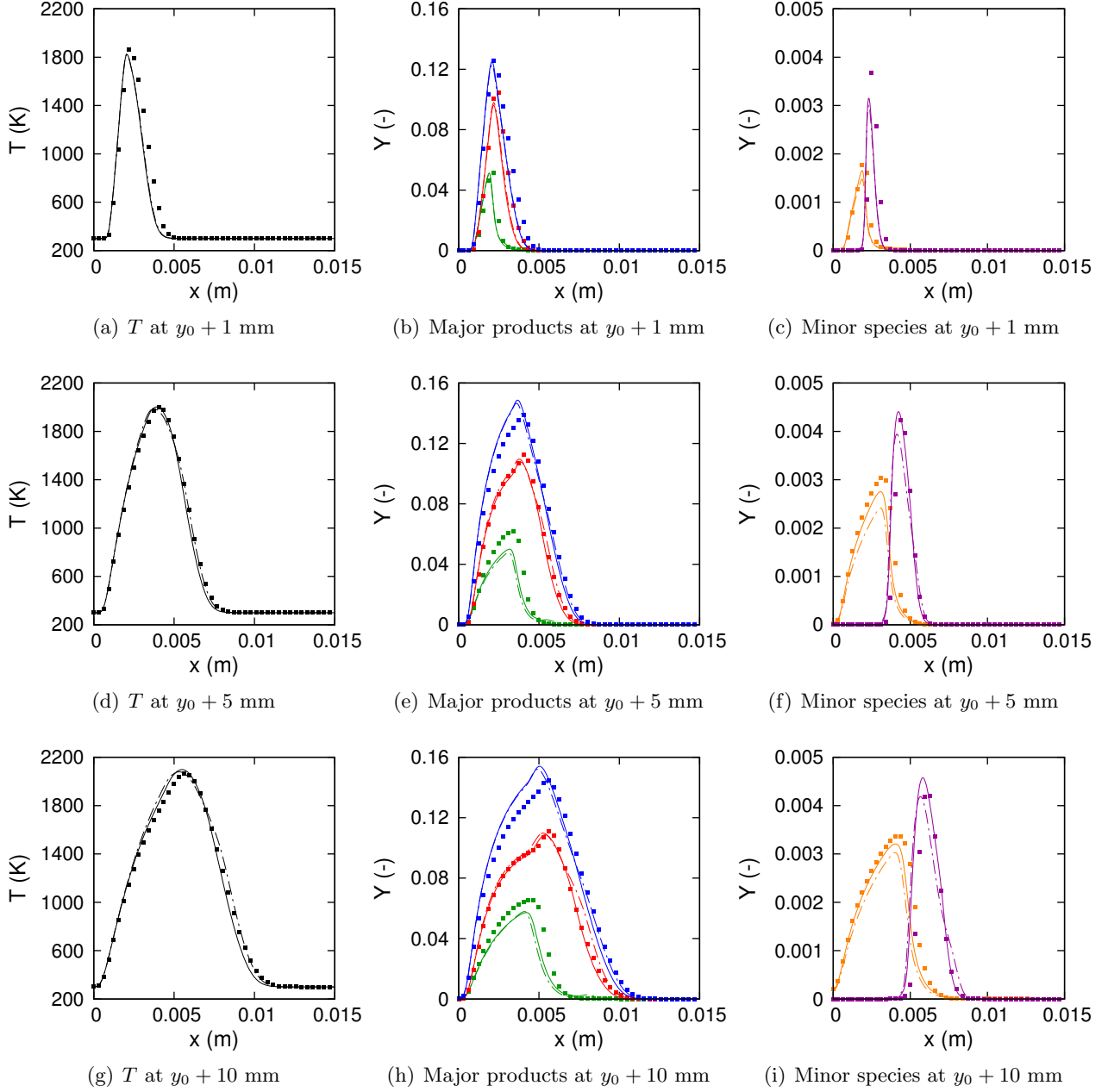


Figure 5.24 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO_2 in red and $\text{H}_2\text{O} \times 1.2$ in blue) and minor species (OH in purple and H_2 in orange) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and HTTC (lines) simulations, using the table prolongation methods P1 (solid lines, simu. HTTC2.1) and P2b (dash-dotted lines, HTTC2.4). The co-flow speed is 0.4 m/s.

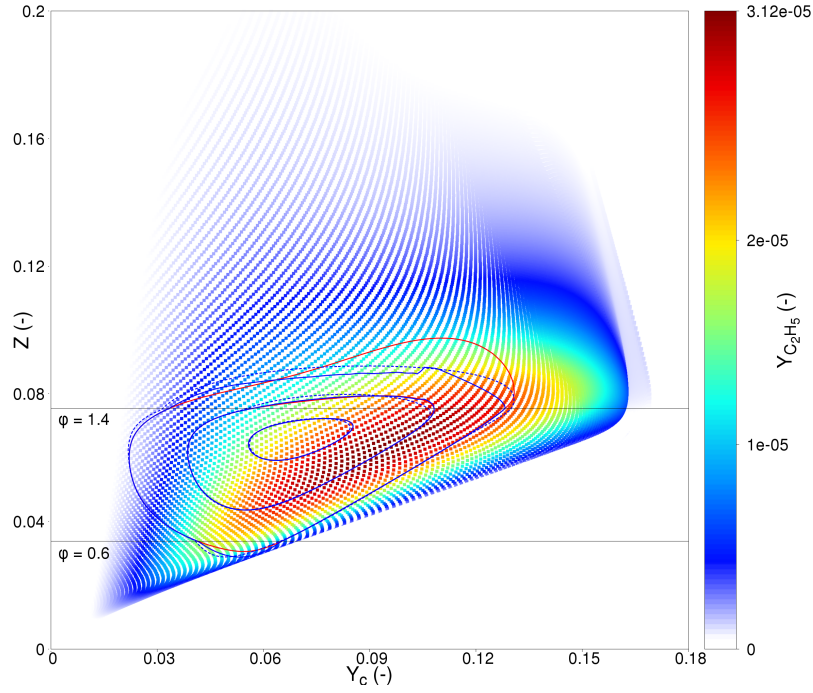


Figure 5.25 – Scatter plot in a (Y_c, Z) space of the FTC simulation, colored by the mass fraction of C_2H_5 . The co-flow speed is 0.4 m/s. Isolines of mass fraction of C_2H_5 ($Y = 1.0 \times 10^{-5}$, 3.0×10^{-5} , 5.0×10^{-5}) extracted from the HTTC tables, prolonged using different methods (P1, P2a and P2b), are also displayed. — P1, — P2a, - - - P2b.

species C_2H_5 . In figure 5.25, contours of mass fraction of C_2H_5 extracted from the HTTC tables are plotted on top of a scatter plot of the reference simulation in a (Y_c, Z) space, colored by the mass fraction of C_2H_5 . This plot shows that the maximum mass fraction is higher in the tables than in the actual reference 2D triple flame (around 3×10^{-5} in the reference flame vs. 5×10^{-5} in the tables) and that it is located at a different (Y_c, Z) point ($(Y_c = 0.09, Z = 0.06)$ for the reference vs. $(Y_c \approx 0.07, Z \approx 0.07)$ in the HTTC tables). For all the tabulated species $k \in m$, the tabulated maps $Y_k(Y_c, Z)$, k extracted from the 1D premixed flame database have discrepancies with the maps from the reference 2D simulations. These discrepancies are met both in the initial equivalence ratio range ($\phi \in [0.6, 1.4]$) and in the prolonged zone. They may be explained by the absence of diffusion in the Z direction during the generation of the table, which is consistent with a higher value of the maximum mass fraction in the HTTC tables. Moreover, the contours of mass fraction extracted from the tables with the three prolongation methods are quite close, which is consistent with the similar results obtained with the latter (flame stabilization height, temperature, main products, etc.), as presented previously.

As a consequence of these differences between the reference simulation and the HTTC tables, some discrepancies between the reference and the HTTC simulations on the mass fraction of C_2H_5 are observed in the physical space (Fig. 5.26). However, even if the predicted values are overestimated, the main structure of the mass fraction field is roughly identical, featuring a high concentration at the flame tip and a decreasing value in the rich area of the flow, which explains the good agreement between HTTC and FTC on the temperature and the transported species. With the method P2b, an unwanted trail of C_2H_5 is present in the lean flow ($\phi < 0.6$), but the species able to react with C_2H_5 are not present in this zone, so it has no effect on the heat release and the mass fraction of the other species. A similar comparison has been made for the mass fraction of CH (see Fig. B.4 in Appendix B). The global structure of the mass fraction field is identical with FTC and HTTC, but

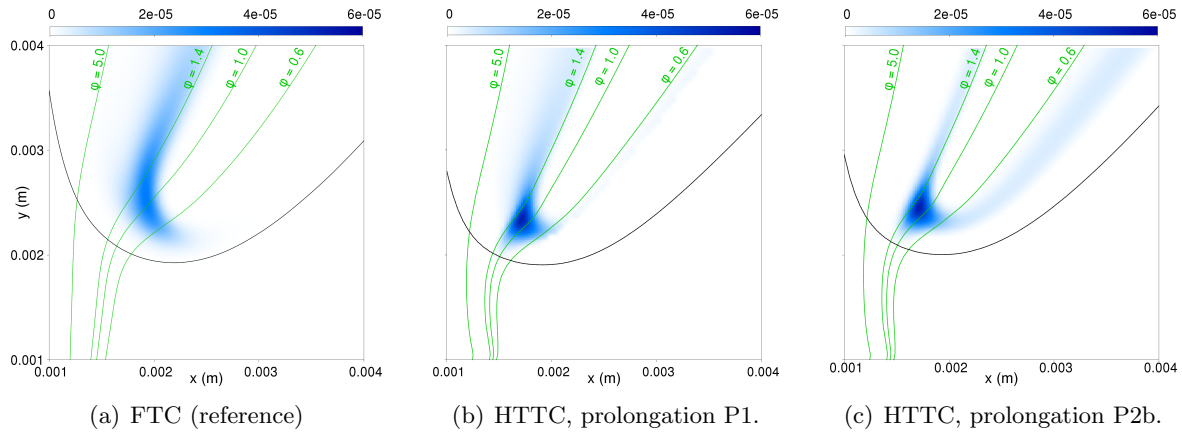


Figure 5.26 – Mass fraction of C_2H_5 in the flame tip, in the flames simulated with FTC and HTTC (locally computed Z and $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$), for a co-flow velocity of 0.4 m/s. Several isolines of mixture fraction (green) and an isoline of progress variable ($Y_c = 0.005$, in black) are also displayed.

the species CH is found in a wider range of Z and the maximum value is lower in the reference than in the HTTC simulations.

The simulations presented in this section highlight the impact of the table prolongation method. The method based on the extrapolation of the raw database (P2a) have been dismissed, because the mass fraction profiles of the tabulated species in the prolonged part are not self-similar with the rest of the database. The two other methods (P1 and P2b) offer similar results, with roughly the same number of tabulated species (9 for P1 and 10 for P2b). However, the method based on the extended flame database (P1) has the advantage of being straightforward, because the table is built up without using any specific extrapolation procedure, and thus the user does not have to select an extrapolation function (gaussian, linear, etc.).

Finally, a good agreement between HTTC and FTC has been observed. The chemical time step is still larger than the convective time step, even with method P2b, in spite of the removal of 6 species from the table. Those species were indeed not responsible for the stiffness of the chemical system. In other words, the simulations performed with HTTC are approximately 5 times faster than with FTC, as already shown in Chapter 4 for the 1D methane flames. The impact of the method used to compute the control variables Y_c and Z , required to access the table, is now discussed.

5.5.2 Influence of the control variables

The method used to compute the control variables Y_c and Z is expected to have an appreciable impact on the simulations run with HTTC, because these variables are the interface between the solver and the table. First, the choice of the species used in the definition of the progress variable is discussed. The calculation of the mixture fraction is then investigated. The different simulations performed in this paragraph are gathered in Tab. 5.6.

5.5.2.1 Progress variable

In Chapter 4, the progress variable was simply based on the sum of the mass fractions of the species CO and CO_2 . With the kinetic mechanisms considered in this work, this definition meets the basic bijection criterion in 1D flames, since the evolution of Y_c is monotonic in the physical space, on the whole range of equivalence ratio covered by the table.

Name/ solver	Co-flow velocity	Prolong. method	Self-sim.	Z	Y_c	N_m
HTTC3.1	0.4 m/s	P1	Yes	Bilger	$1 - Y_{CH_4} - Y_{O_2} - Y_{N_2}$	9
HTTC3.2-06	0.6 m/s	P1	Yes	Bilger	$Y_{CO} + Y_{CO_2}$	9
HTTC3.3	0.4 m/s	P1	Yes	Transp.	$Y_{CO} + Y_{CO_2}$	9
HTTC3.3-06	0.6 m/s	P1	Yes	Transp.	$Y_{CO} + Y_{CO_2}$	9

Table 5.6 – Summary of the simulations run with the HTTC solver in section 5.5.2. The number of tabulated species is denoted N_m .

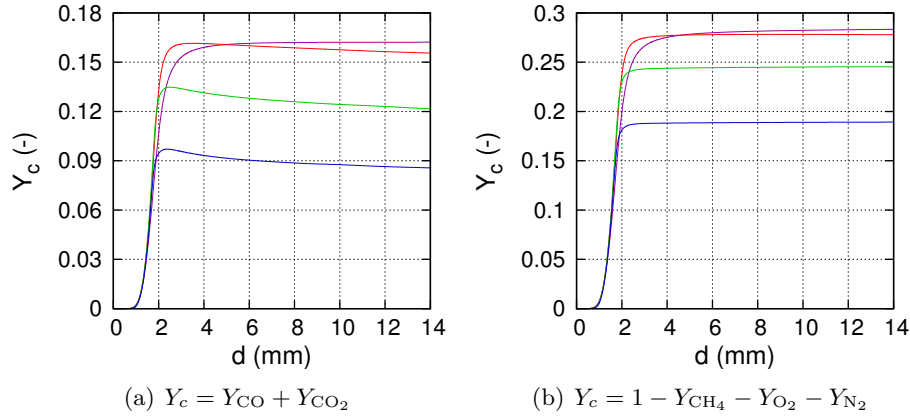


Figure 5.27 – Progress variable Y_c vs. a curvilinear abscissa d in the reference simulation, along mixture fraction isolines corresponding to $\phi = 0.7$ (—), 1.0 (—), 1.2 (—) and 1.8 (—). The co-flow velocity is 0.4 m/s. Two definitions of Y_c are used.

However, the reference simulation of the edge-flame shows here that the validity of this definition can be questioned. Figure 5.27(a) shows the progress variable Y_c along several isolines of Z in the reference simulation, for lean to rich values of the equivalence ratio. For $\phi = 0.7$, 1.0 and 1.2 it decreases in the burnt gases, downstream of the premixed flame front located at a curvilinear abscissa $d \approx 2$ mm, whereas it grows monotonically in the 1D premixed flame database. This phenomenon can be caused by the diffusion of CO and CO₂ toward the outer air flow, caused by the strong gradients of Z , not taken into account in the HTTC tables. For higher values of Z , the other profiles of Y_c are monotonic. In other words, in the reference simulation, for a given point (Y_c, Z) , the mass fraction of the species can have several values, which is not allowed in the framework of tabulated chemistry. This issue is illustrated for the species CH in figure 5.28(a), especially for $\phi = 1.2$, which is the equivalence ratio where CH is present in the trailing diffusion flame (Fig. 5.12). This issue highlights the difference between the 2D flame structure met in the reference simulation, and the independant 1D flame structures stored in the HTTC table.

A scatter-plot in the $(Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}, Z)$ space of the reference simulation is plotted in figure 5.29(a). For a small range of equivalence ratio around $\phi = 1.4$, reactive points are found beyond the chemical equilibrium value of Y_c , predicted with the equilibrium code EQUIL, or with REGATH in 1D flames. They may be explained by the presence of the trailing diffusion flame, increasing the production of CO and CO₂ in the rich zone of the burnt gases, downstream the premixed flame front, and not considered in the 1D premixed flame database. Hence, such points cannot be present in the HTTC tables, which is expected to lead to additional errors in this area of the (Y_c, Z) space.

Two additional features of the edge flames simulated in this study are here highlighted: the non-

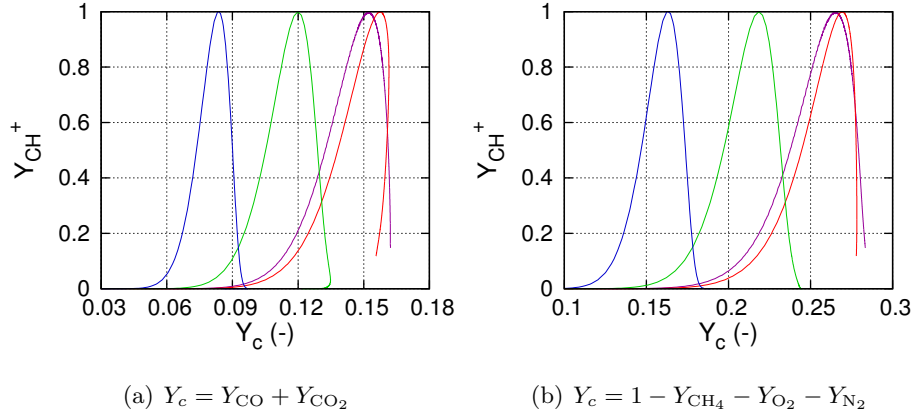


Figure 5.28 – Mass fraction of CH vs. progress variable Y_c in the reference simulation, along mixture fraction isolines corresponding to $\phi = 0.7$ (—), 1.0 (—), 1.2 (—) and 1.8 (—). The co-flow velocity is 0.4 m/s. Two definitions of Y_c are used.

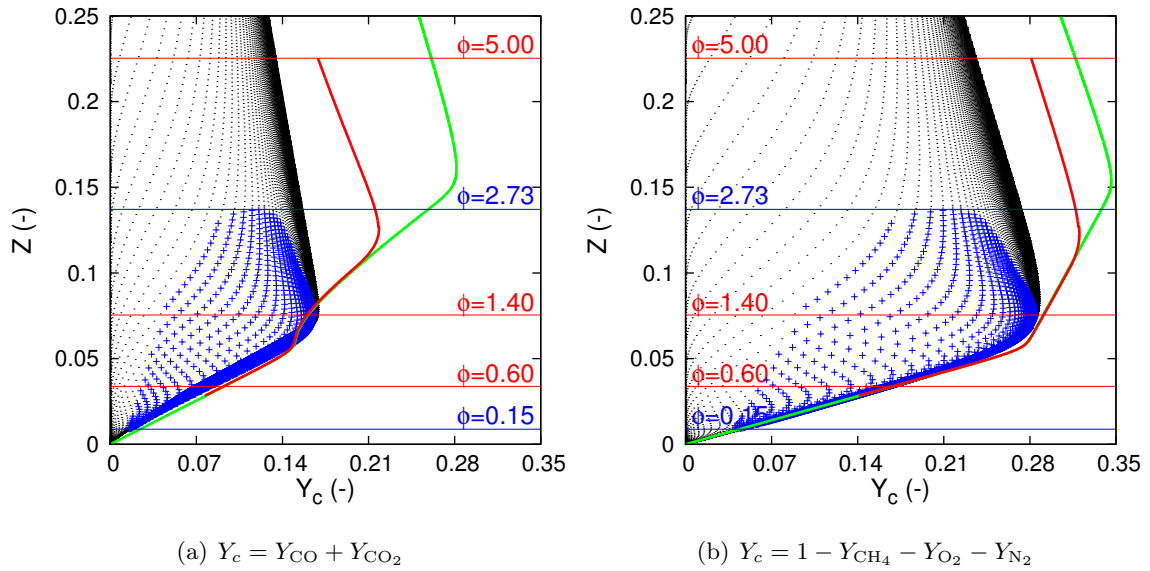


Figure 5.29 – Scatter plot in the (Y_c, Z) space for the detailed chemistry simulation (black dots), for a co-flow velocity of 0.4 m/s. The blue crosses (+) represent points of the flow where $\dot{\omega}_E$ is higher than 1% of its maximum value. The equilibrium curve from EQUIL (—) and the value of Y_c in the burnt gases extracted from the 1D flame library computed with REGATH (—) are also displayed.

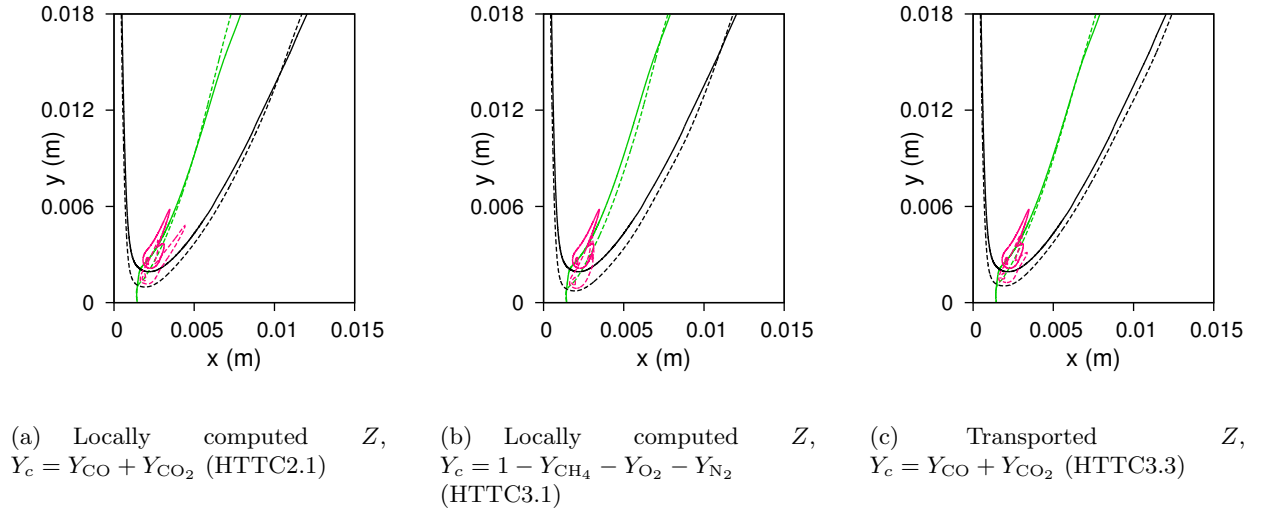


Figure 5.30 – Isolines of stoichiometric mixture fraction (green) and of progress variable ($Y_c = 0.005$, black), in the flames computed with FTC (solid lines) and HTTC (dashed lines) using different methods to compute the control variables. The co-flow velocity is 0.4 m/s.

monotonic behavior of the progress variable in the reference simulation, and the presence of points where the progress variable is larger than its chemical equilibrium value predicted in the 0D and 1D codes. In order to assess their impact on the HTTC method and their contribution to the discrepancies with the reference, an additional HTTC simulation has been run with another definition of Y_c . This new progress variable is defined as the difference of the total mass of the flow and the mass of the reactants, so that it takes the contribution of all the combustion products into account. It reads:

$$Y_c = 1 - Y_{\text{CH}_4} - Y_{\text{O}_2} - Y_{\text{N}_2} \quad (5.3)$$

The progress variable now evolves monotonically along all the mixture fraction isolines in the reference simulation (Fig. 5.27(b)), ensuring that there is only one possible value of the mass fraction for a given value of Y_c (Fig. 5.28(b)). No value beyond the chemical equilibrium is met (Fig. 5.29(b)).

This progress variable has been tested in a simulation performed with a self-similar table prolonged with method P1 (HTTC3.1). The results are compared both with the same HTTC simulation performed previously with $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ (HTTC2.1) and with the reference results. The co-flow velocity is 0.4 m/s. The structure of the flame is very close to what is observed in the reference flame (Fig. 5.30(b)). The flame stabilizes at a lower height, because the propagation velocity is slightly smaller (Tab. 5.7). A nearly perfect agreement on the temperature and the CO mass fraction is obtained with the reference in the radial profiles, at every heights above the tip. The mass fractions of CO_2 , H_2O and the other minor species are well predicted at $y_0 + 1$ mm, and are correctly computed at $y_0 + 5$ mm and $y_0 + 10$ mm, but with small discrepancies with the reference results. A very similar flame structure is obtained with the two simulations performed with the different progress variables (Fig. 5.30(a) and 5.30(b)). Almost no difference between the two simulations is observed in the flame tip. The latter is located at a very similar height and propagates with almost the same velocity in both cases. With the new definition of Y_c , larger discrepancies on the mass fraction of CO_2 are observed higher in the flame ($y_0 + 5$ mm and $y_0 + 10$ mm) where the diffusion process are more effective, but a better agreement is observed for CO. Thus, it is not possible to conclude about what definition of Y_c gives the best results when compared to the reference results, even if an improvement of the results

Solver	Height and velocity at flame tip	
	y_0 (mm)	U_n (m/s)
Co-flow at 0.4 m/s		
FTC	1.99	0.209
HTTC		
$Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$, local Z from Bilger (HTTC2.1)	0.89	0.215
$Y_c = 1 - Y_{CH_4} - Y_{O_2} - Y_{N_2}$, local Z from Bilger (HTTC3.1)	0.74	0.225
$Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$, transported Z (HTTC3.3)	0.74	0.226
Co-flow at 0.6 m/s		
FTC	7.76	0.292
HTTC		
$Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$, local Z from Bilger (HTTC3.2-06)	4.67	0.303
$Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$, transported Z (HTTC3.3-06)	4.84	0.304

Table 5.7 – Height and propagation velocity at flame tip, in the flames computed with FTC, and HTTC, by calculating Z and Y_c with different methods.

would have been expected with the new definition.

5.5.2.2 Mixture fraction

So far, the mixture fraction Z has been computed in the edge-flames by using a combination of all the local species mass fractions of the flow. However, when building the HTTC table, the 1D flames are indexed and located using the mixture fraction in the fresh gases, denoted Z_u , and defined as $Z_u = Z(Y_c = 0)$. In the HTTC simulations presented in this chapter, the locally computed value Z is assumed to be equal to Z_u , and thus is used to access the table. Such an assumption is valid when unity Lewis numbers are used in 1D premixed flames to simplify the diffusion modeling ($Z(Y_c) = Z_u, \forall Y_c$). It is not the case anymore when the differential diffusion effects are taken into account in simulations: the differential diffusion leads to variations of Z within the flame front (Fig. 5.32), because every species have a different diffusion velocity.

As a consequence, $Z(Y_c) \neq Z_u$ for almost every value of Y_c (Fig. 5.33), except for $Y_c = 0$, $Y_c = Y_{c,eq}$ and one single value between 0 and $Y_{c,eq}$. If for a given value of Y_c , $Z(Y_c)$ is used as the control parameter to access the table in place of Z_u , different profiles for wrong values of ϕ , either too lean or too rich, are selected instead of the correct profile associated to Z_u . The values of the tabulated mass fraction are thus not consistent with the local transported mass fractions, which causes a violation of the mass conservation. When computing 1D premixed flames using the HTTC solver, with a locally computed Z (as done in the 2D cases) instead of setting $Z = Z_u$ at each point (as done in Chapter 4), totally inaccurate results are obtained (Fig. 5.34), and the flame speed is different from its expected value at Z_u .

In the edge flames presented in this chapter, strong mixture fraction gradients are met at the flame tip. In this case, the mixture fraction variations due to differential diffusion are small compared to the gradients of Z in the direction normal to the isolines of Z . Consequently, the impact of the differential diffusion in the direction normal to the premixed flame front, on the computation of the value of Z used to access the table, is expected to be small. To test this assumption, a HTTC simulation has

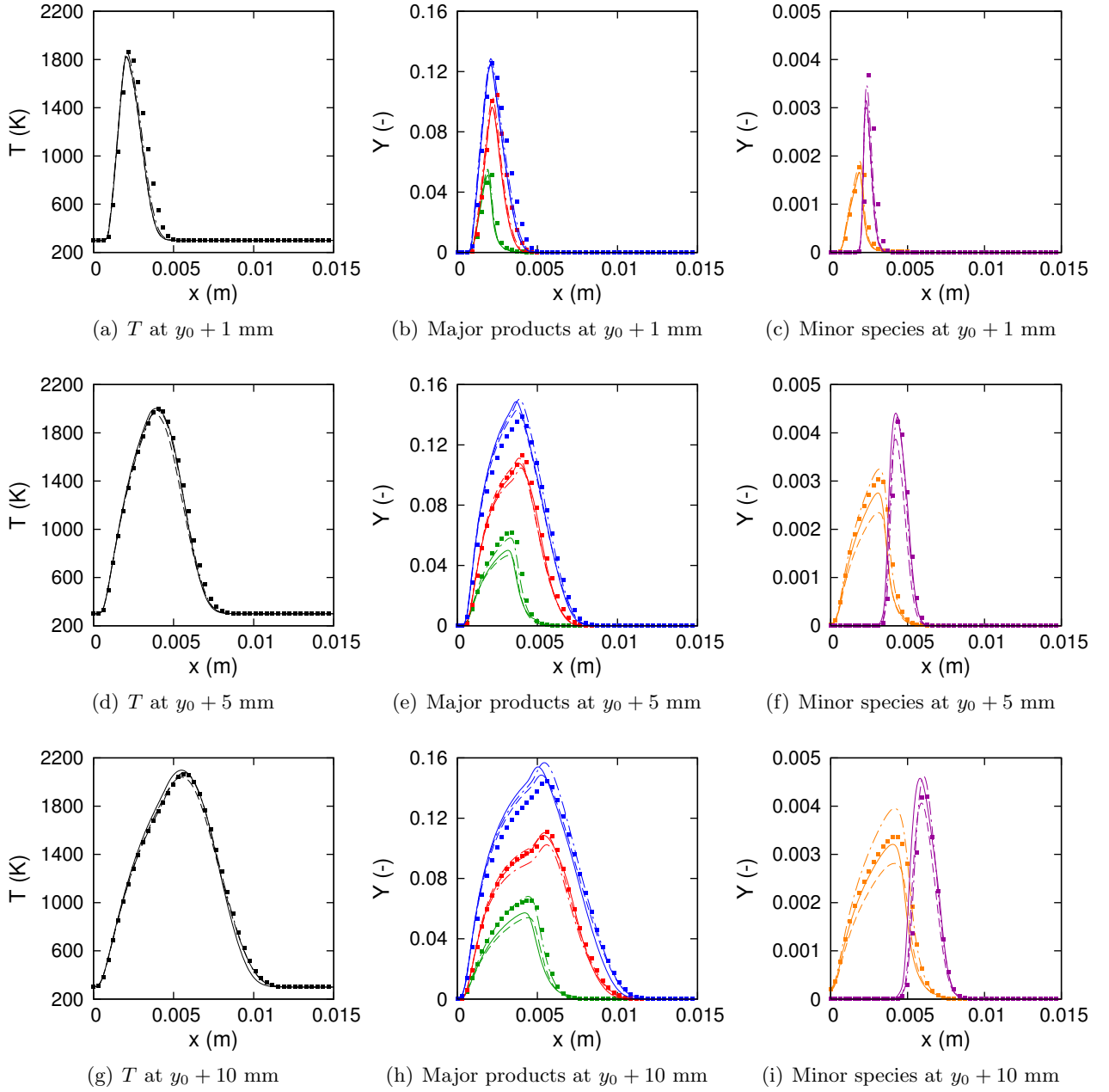


Figure 5.31 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO_2 in red and $\text{H}_2\text{O} \times 1.2$ in blue) and minor species (OH in purple and H_2 in orange) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and HTTC (lines) simulations, using different methods to compute the control variables. The co-flow velocity is 0.4 m/s. Solid lines: locally computed Z and $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ (simu. HTTC2.1), dashed lines: transported Z and $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$ (HTTC3.3), dash-dotted lines: locally computed Z and $Y_c = 1 - Y_{\text{CH}_4} - Y_{\text{O}_2} - Y_{\text{N}_2}$ (HTTC3.1).

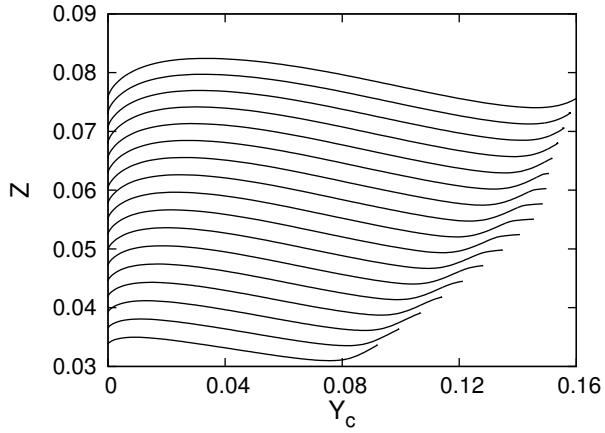


Figure 5.32 – Mixture fraction Z versus the progress variable Y_c , in methane flames for several $\phi \in [0.6, 1.4]$ ($P = 1$ bar and $T_u = 300$ K), computed with the 1D flame solver REGATH.

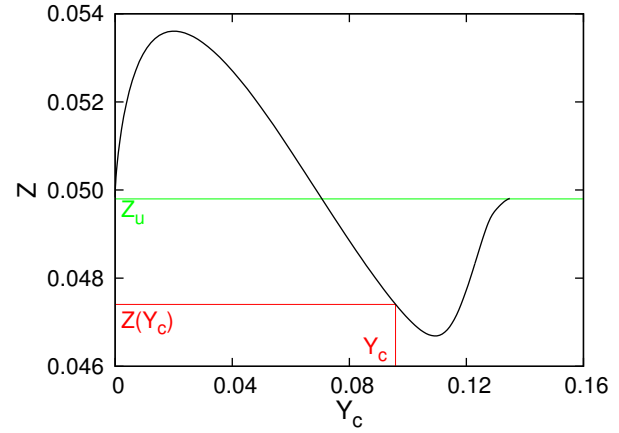


Figure 5.33 – Mixture fraction Z versus the progress variable Y_c in a methane flame. If Z is computed locally, for almost any value of Y_c , $Z(Y_c) \neq Z_u$.

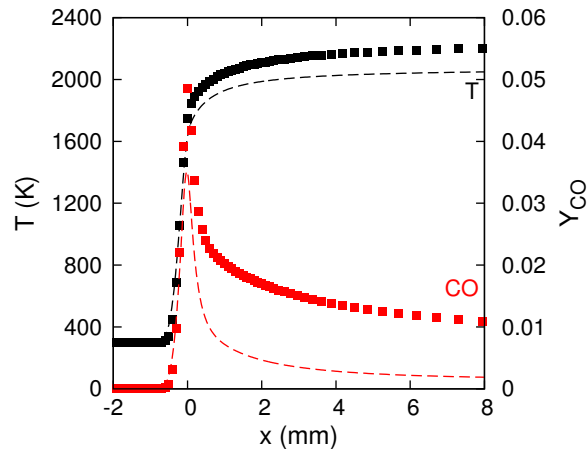


Figure 5.34 – Temperature and CO mass fraction in a stoichiometric methane flame ($P = 1$ bar, $T_u = 300$ K). Squares : reference detailed chemistry from REGATH. Dashed lines : HTTC solver in SiTCom-B, with Z computed locally without any correction.

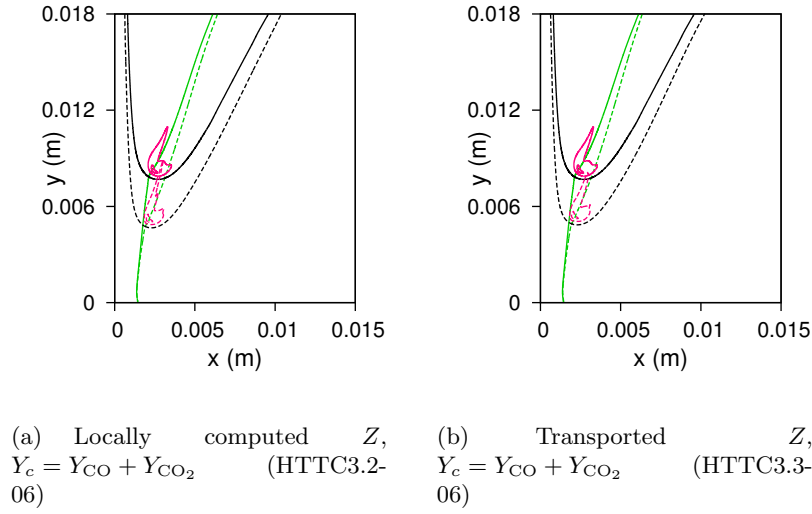


Figure 5.35 – Isolines of stoichiometric mixture fraction (green) and of progress variable ($Y_c = 0.005$, black), in the flames computed with FTC (solid lines) and HTTC (dashed lines) using different methods to compute the control variables. The co-flow velocity is 0.6 m/s.

been performed, by transporting Z with a Lewis number equal to 1, instead of computing it using the local mass fractions. A self-similar table with a prolongation based on a flame database extended on $\phi \in [0.5, 5]$ is used (method P1). The progress variable is defined as $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$. The two velocities of the co-flow have been tested, to test two intensities of ∇Z at the flame tip.

For $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s, the flame structure, the flame stabilization height and the propagation velocity are almost identical, whatever Z is transported with a unity Lewis number, or locally computed with the species mass fractions (Fig. 5.30(a), Fig. 5.30(c) and Tab. 5.7). The temperature and mass fractions are also very similar at every heights in the radial profiles, except for the minor species (OH and H_2), which are slightly underestimated when Z is transported (Fig. 5.31). For $U_{\text{coflow}} = 0.6$ m/s, the two methods used to compute Z still predict almost identical results. The mixture fraction gradient is still large, so that the influence of the differential diffusion along isolines of the progress variable may be small. However, the flames simulated with HTTC propagate faster and stabilize at a lower height than the reference flame (Fig. 5.35 and Tab. 5.7). The agreement with the reference on the temperature and mass fractions measured in the radial profiles is still satisfying, but larger discrepancies than for $U_{\text{coflow}} = 0.4$ m/s are observed (see Fig. B.5 in Appendix B).

As a conclusion, the differential diffusion in the direction normal to the isolines of Y_c does not seem to play a critical role in the calculation of the value of Z used to access the HTTC table, in the edge flames simulated in this chapter, since the method used to compute Z does not affect the results. Moreover, solving a transport equation for Z is against the principle of HTTC, and the unity Lewis number assumption should ideally be avoided. However, in cases where the gradients of Z are smaller (e.g. a fully premixed flame), the differential diffusion may become more effective and may affect the local building of Z . Thus, large errors may show up if Z is computed locally, as observed in 1D flames. In Appendix C, the outline of a method is proposed to get the proper value of Z to access the HTTC table, by reconstructing the value of Z_u corresponding to the local Z .

5.5.3 Self-similarity of radical species in triple flames

Even though the HTTC simulations presented previously led to promising results by making use of tables based on 1D premixed flames, this study suggests that an even better agreement with the reference simulations could be reached if the diffusion effects, due to the strong gradients of Z , were taken into account in the tables. Indeed, the mass fraction contours of tabulated species extracted of HTTC tables, plotted on top of a scatter-plot of the reference simulation in figure 5.25, have shown that some species spread on a larger range of Z in the actual edge flame than in the table. Moreover, the progress variable may feature a non-monotonic behavior in the 2D reference simulation (Fig. 5.27) and exceed its chemical equilibrium value computed for a given Z (Fig. 5.29), while those phenomena do not show up in the 1D premixed flame database.

In [158], tables are built using multidimensional manifolds in order to take the fluxes accross the isolines of mixture fraction into account. In the frame of HTTC, tabulation of 2D flames could be considered to include diffusion in both Y_c and Z directions in the table. It is briefly shown in this section that the self-similarity property of hydrocarbon flames is not restricted to various types of 1D canonical flames, but also apply to 2D triple flames. Reduced mass fraction profiles $Y^+(Y_c^+)$ have been extracted from the reference simulation along several isolines of mixture fraction, on a range of equivalence ratio roughly equal to the flammability limits measured in this simulation ($\phi \in [0.2, 2.7]$). The reduced profiles are plotted in figure 5.36 for a few radical species (CH , CH_2 , C_2H_3 and C_2H_5), which are stored in HTTC tables. The progress variable is computed as $Y_c = 1 - Y_{\text{CH}_4} - Y_{\text{O}_2} - Y_{\text{N}_2}$.

For all the tabulated species, the reduced profiles are correctly self-similar, even if both a premixed and a diffusion flame structure are met along each isoline. For a few values of the mixture fraction, the mass fraction does not go back to zero in the burnt gases and the reduced profile is not perfectly superimposed with the other profiles. Those values are located around the stoichiometry, where the diffusion flame takes place downstream of the premixed tip region. The reduced profiles extracted from the 2D edge-flame simulation are in a fair agreement with the stoichiometric reduced profiles coming from the 1D flames (but the reduction parameters may depend on the flame structure for a given $S \in \Omega_S$), showing that the self-similarity is a very generic property which can be found in various configurations of hydrocarbon flames.

5.6 Conclusion

In this chapter, it has been shown that the HTTC solver is capable of simulating with a correct accuracy flames with strong mixture fraction gradients, which are usually a difficult case for the classic tabulated chemistry methods. The shape, the propagation speed and the stabilization height of the flames have been predicted with a correct accuracy, with a computational cost divided by approximately 5 compared to the fully-transported chemistry solver, thanks to the increase of the chemical time step. The temperature, the mass fraction of the main products of the combustion and of some minor species have also been computed with a good agreement with the reference results.

The simulation of configurations featuring strong mixture fraction gradients using tabulated chemistry methods come accross significant obstacles, because the tables usually rely on a given canonical flame structure, which is not representative of the more complex structure of the simulated flame. With FPI and HTTC, the chemical tables are based on a database of 1D premixed flames, each of them being computed for a constant mixture fraction. Thus, the fluxes of tabulated variables in the direction of the mixture fraction are not taken into account. Another difficulty is the need for a prolongation of the tables, since the 1D premixed flames are limited to a small part of the Z space only.

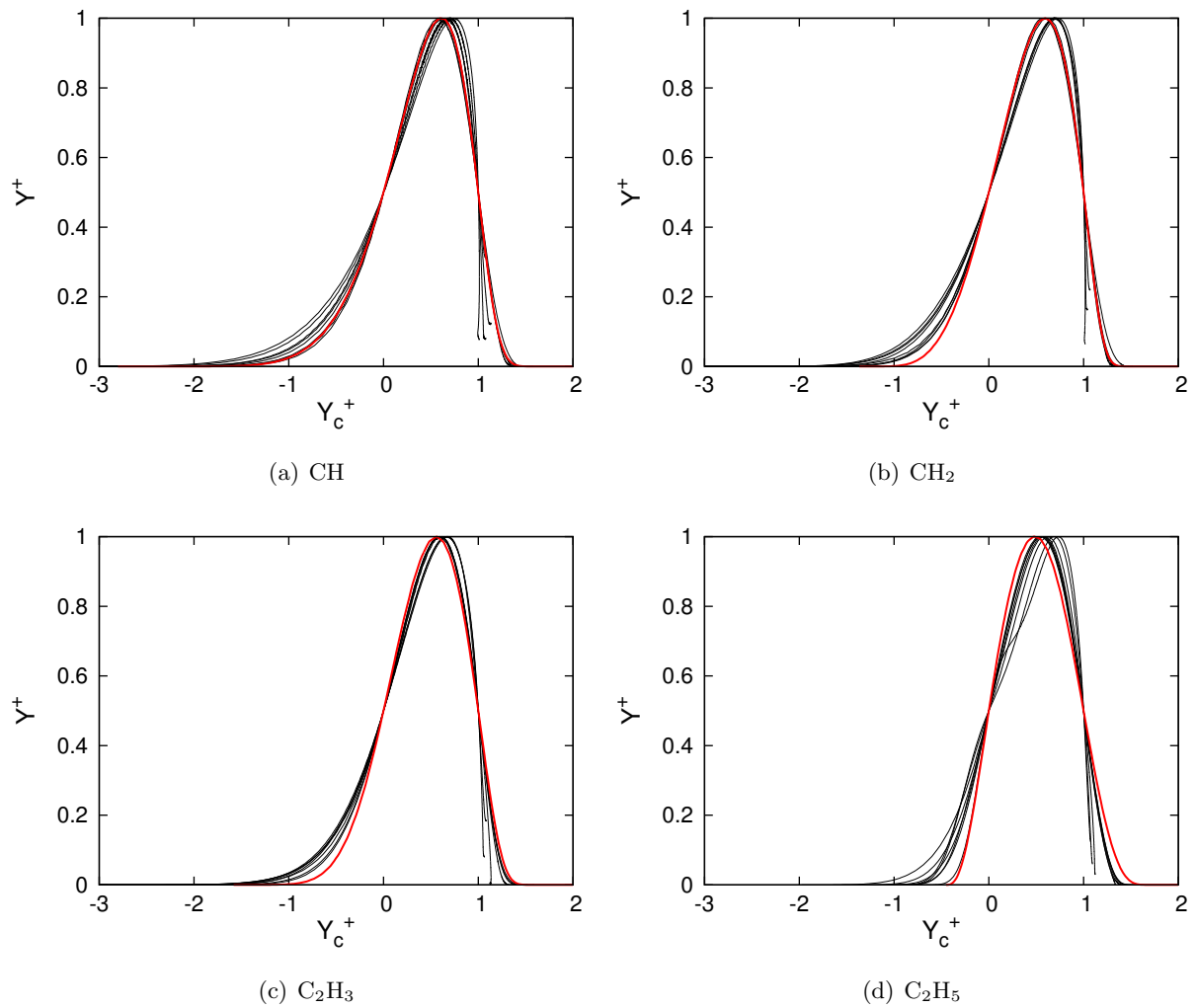


Figure 5.36 – Reduced mass fraction profiles of radical species extracted from the reference simulation (black), plotted along isolines of mixture fraction, corresponding to several value of ϕ in $[0.2, 2.7]$. The co-flow velocity is 0.4 m/s. The reduced profiles extracted from the stoichiometric 1D flame ($P = 1$ bar and $T_u = 300$ K) are plotted in red.

With the FPI method, most of the variables of the flow (temperature, mass fractions, transport coefficients, thermal capacities, source terms, etc.) are not computed or transported at run time, but directly read in the chemical table. Moreover, the table is accessed everywhere in the simulated domain, whatever the value of $Z \in [0, 1]$. For these reasons, the difficulties mentioned above play a critical role in the FPI simulations, which are consequently not in agreement with the reference results. With HTTC however, a part of the variables computed in the flow relies mainly or totally on the transported species, which are free from the difficulties related to the table. Besides, the HTTC table is only involved in the calculation of the chemical reaction rates in the reactive zones of the flow. Those interesting features account for the good agreement of the HTTC results with the reference results.

The prolongation of the HTTC table turns out to be essential for the accuracy of the results. The simulations cannot be performed using tables without prolongations, because a part of the heat release is missed, especially in the rich premixed region, and because it generates discontinuities that endanger the stability of the solver. The three prolongation methods presented in Chapter 4 have been applied to the simulation of triple flames, and all of them provide similar results. However, the mathematical functions used to extrapolate the mass fractions in the direction of the mixture fraction must be selected carefully, otherwise radical species appear where they should not be present. Moreover, when the “raw” flame database is extrapolated with the method P2a, the self-similarity cannot be successfully applied to the extrapolated part of the table. Consequently, the prolongation method that uses a flame database generated on an extended equivalence ratio range (method P1), instead of using extrapolations, seems to be the best choice, because it works around those two issues.

Contents

6.1	Conclusions	205
6.1.1	Purpose of HTTC and objectives of this Ph.D. thesis	205
6.1.2	Summary of the work and the results of this Ph.D. thesis	206
6.2	Perspectives	209

This last conclusion chapter briefly reminds the purpose of the Hybrid Transported-Tabulated Chemistry method, and the objectives of this Ph.D. thesis. It summarizes the main achievements and results of this work, before giving some topics to investigate about, in order to improve the HTTC method in future studies.

6.1 Conclusions

6.1.1 Purpose of HTTC and objectives of this Ph.D. thesis

Today, the performances of a CFD code are based on its capacity to provide a good compromise between several criteria :

- The accuracy of the outputs. In other words, given the input parameters of a system, experiment or device (geometry, flow rate, temperature, composition of the reactants, etc.), the code should be able to provide output variables (concentration of pollutants and temperature of the flow at the outlet, pressure inside the system, etc) in accordance with what is actually observed in reality.
- The ability to be multi-purpose. The models used in the code should be as universal as possible, and should not require any tuning process depending on the simulated case before use. It means that users of the code should be able to simulate successfully any configuration, knowing its geometry and the inlet conditions only. Coupled with a good accuracy of its models, this criterion is essential for the code to have a proper prediction capability.
- The computation cost. Even if computers are becoming more and more powerful, this criterion is still the main bottleneck of CFD.

Chemical processes involved in combustion make this compromise even harder, because of the additional phenomena that must be included in the models. Several approaches have been proposed so far in combustion codes. Detailed chemistry solvers are known to be accurate and can be used in a large range of temperatures, pressures and equivalence ratios without requiring any specific modification of the kinetic mechanism, but using them in real system (e.g .engine combustion chambers) is usually not realistic because of a prohibitive cost. Reduced kinetic mechanisms tackle the issue of the computation cost, but they are not as accurate as the detailed mechanisms they are extracted from, and are generally bound to the limited range of temperature and equivalence ratio they have been built for. Tabulated chemistry methods lead to fast simulations and are quite accurate, since the tables are based on detailed kinetics. However, their accuracy is expected to decrease when they are used in conditions different from those of the tables are built for (especially when the flame structure is different), and

the size of the tables rapidly increases with the number of phenomena to be modeled (thermal losses, pressure variation, etc.).

In this manuscript, a novel hybrid approach is proposed to get the accuracy and the large range of applicability close to those of the detailed kinetic mechanisms, but with a computational cost which is compatible with computing resources available today. This approach, called Hybrid Transported-Tabulated Chemistry, is based on a blend of a detailed chemistry solver, which computes the mass fractions of the main species of the flow (i.e. the reactants and the main products), and a tabulated chemistry method, used to complete the full set of species contained in the detailed kinetic mechanism, by getting the mass fraction of all the radical species in a table.

Its efficiency resides in the fact that the mathematical stiffness of the usual chemical systems are mainly caused by the presence of the radical species. Tabulating the latter instead of transporting them thus allows for a large increase of the chemical stability limit, even with fully explicit numerical schemes for the time advancement. Moreover, in the large kinetic mechanisms, a large part of the species are radical and minor species. It means that the set of transported species is small, which is a second asset to decrease the computation cost. Unlike usual implementations of the classic tabulated chemistry methods, the HTTC tables can contain data for a large range of temperatures, pressures and equivalence ratios without any size issue, thanks to a smart storage of the data, based on the self-similarity of the mass fraction profiles.

Ribert *et al.* introduced HTTC and started to show its potential on the computation of methane-air flames in a 1D steady flame solver [188]. The main idea of this Ph.D. thesis was to go further in the development of HTTC, to head toward the simulation of more complex configurations with this method. Hence the objectives of this work were to:

- implement HTTC in a DNS/LES code;
- in the DNS/LES framework, assess the performances of HTTC compared with other state-of-the-art chemistry solvers (detailed chemistry and tabulated chemistry), in terms of computation cost and accuracy, in particular in configurations that are known to be difficult for the classic tabulated chemistry methods (e.g. edge-flames);
- show the benefits of HTTC when it is used to simulate the combustion of heavy fuels (octane, decane, kerosene surrogates, etc.), with large kinetic mechanisms (around 100 species and more), and investigate the capabilities of the method to model special chemical processes, like the production of NO_x.

6.1.2 Summary of the work and the results of this Ph.D. thesis

Improvement of the FPI solver

The initial implementation of FPI, based on constant Lewis numbers equal to 1, have been modified to take the differential diffusion into account. The flame speed has been significantly improved by tabulating the diffusion coefficient of the progress variable, using an expression that includes the individual diffusion coefficients of the species to calculate its value when building up the FPI table. The impact of the assumption of unity Lewis numbers made in some diffusion terms in the energy transport equation have also been investigated. Additional minor improvements of the flame speed have been achieved by reformulating the energy transport equation to remove the effect of the assumption of unity Lewis numbers. Finally, a nearly perfect agreement on the flame propagation speed, the temperature and the mass fractions have been obtained between FPI and reference results computed with the detailed chemistry solver in 1D flames.

Optimization of the FTC solver

Several optimisation tasks have been performed on the FTC solver, and have shown that an optimisation work is essential to ensure good performances of detailed chemistry solvers, especially when large kinetic mechanisms are used. Significant computation cost ratios between the non-optimized and the optimized codes have been reached, ranging from 4 for methane/air flames (29 species) to more than 40 for iso-octane/air flames (857 species). To reach such speed-up ratios, the critically slow parts of the code have been identified with code profiling tools. Those parts, in particular those dedicated to the computation of the transport coefficients and the reaction rates, have been improved by pre-computing and tabulating temperature-dependent terms, involving complex functions (e.g. exponential), instead of computing them in every cell at each timestep. Additional computation time has been saved by replacing pointer lists by arrays, to ensure a faster access to data in memory.

Implementation of the HTTC solver

During this thesis, HTTC has been implemented as a new solver in SiTCom-B. The emphasis has been put on the robustness and the performances of the solver, and a particular attention has been given to make it as convenient as possible to use, and to facilitate the task for further developments and for adding new features in it. This has been achieved by preserving the framework of SiTCom-B (modular structure, format of the input files, etc.), and by following good practices of programming, such as the use of version control system (Git¹) to keep track of the different stages of the development of the code. The HTTC solver shares the same kernel as the optimized FTC solver, which is an asset to reduce its computation cost. Its performances have been evaluated on several computer clusters in this work. HTTC tables are easily generated from any flame database, thanks to an automatic generator tool developed during this Ph.D. thesis. It reads and processes the data to build up a self-similar table readily compatible with the HTTC solver implemented in SiTCom-B.

Validation of the HTTC solver and assessment of its performances

Then, the implementation of the HTTC solver and its performances have been assessed on 1D flames, with a comparison with reference results computed with the detailed chemistry solver. A very good agreement between HTTC and the detailed chemistry have been obtained on all the main variables (flame speed, mass fraction, temperature, etc.) for a large range of equivalence ratios and pressures, provided that some corrections are added to ensure the mass conservation, and to fix errors on the self-similarity of the mass fraction profiles close to equilibrium.

Compared to the FTC solver of SiTCom-B, HTTC allows for very large reduction of the global computation cost of the simulations. The amount of time saved depends on the considered fuel and kinetic mechanism. The largest amount of the time is saved thanks to the dramatic increase of the chemical timestep, from a factor 5 for methane/air flames and up to 4 orders of magnitude for the decane and kerosene surrogate, allowed by removing the radical species from the set of the transported species.

Another asset of HTTC resides in the size of the set of the transported species, which is roughly the same whatever the kinetic mechanism used in the simulation and the total number of species it contains. Indeed, it has been shown that the number of transported species is around 15, for the three mechanisms considered in this study (29, 74 and 857 species). A “fast” version of HTTC, that uses the full set of species mainly for the computation of the reaction rates, and the transported species only to get most of the variables needed by the solver, has been introduced. Consequently, with the fast version, the increase of the computation cost per timestep remains limited when the total number of

1. Created by the developer of the Linux kernel, Git is a free version control system mainly designed for the management of source codes in software development. It is used to safely keep a full history of the different code versions, and is helpful to coordinate the work on the code among several persons. See <https://git-scm.com>.

the species in the mechanism increases, because the number of transported species is constant. When the size of the mechanism grows, more time is only spent to compute the reaction rates and to read the table. For example, it has been shown that the duration of an iteration is only 6 times larger when the size of the mechanism increases from 29 to 857 species (ratio ≈ 30).

Thus, HTTC appears to be a promising method to perform detailed chemistry simulation in fully explicit compressible codes. The larger is the kinetic mechanism, the larger is the decrease of the computation cost compared to standard detailed chemistry solvers where all the species are transported. Moreover, one should keep in mind that for heavy fuels, reduction of the detailed mechanisms can hardly lead to reduced schemes smaller than 15-20 species, even with the most advanced reduction methods [141, 99, 102]. Hence for the combustion of heavy fuels, HTTC seems to be a competitive approach.

Self-similarity in hydrocarbon flames

It has been shown that, thanks to the proper mathematical transformations, the mass fraction profiles extracted from flames computed for a large range of pressure, fresh gas temperature and equivalence ratio can be almost overlaid on one single profile. This property, called self-similarity, has been identified in all the kinetic mechanisms used in this work, whatever the fuel. For the heavy fuels though, some heavy species coming from the breakdown of the initial reactants before heat is released, feature double-peak profiles, that must be identified and transformed differently from the other lighter species to be properly self-similar. The self-similarity has been used to dramatically reduce the amount of data to be stored, and thus to generate very compact tables that contain several entries for the equivalence ratio, the pressure and the fresh gas temperature.

Computation of flames with NO_x emission using HTTC

The computation of methane-air and decane-air flames with NO_x emission has been investigated with HTTC. Unlike the chemical reactions that lead to the heat release in the flame front, the reactions involved in the NO_x chemical mechanism can be either fast or very slow, and can occur on small scales (less than 1 mm) in the flame front or large scales (more than 1 m) downstream of the flame. Consequently, several species containing nitrogen have a non-zero mass fraction in the burnt gases. Those species are not supposed to be tabulated, according to the species selection criteria of the HTTC framework. Moreover, when applied to the NO_x, the mathematical transformations used to reduce the mass fraction profiles do not lead to self-similar profiles. Hence, HTTC is not well-suited, as is, for the kinetic mechanisms including NO_x chemistry, and must be adapted.

Two approaches have still been attempted to introduce the chemistry of NO_x in the computation of methane-air and decane-air flames, and to get the mass fractions of the main NO_x species (NO, NO₂ and N₂O). The first one consists in replacing the detailed mechanism for the NO_x by a very reduced mechanism, and predicts correctly the equilibrium values of the main NO_x species far from the flame, but leads to large discrepancies with the fully-detailed mechanism in the vicinity of the flame region. The second one consists in keeping the whole detailed mechanism, even the part that describes the NO_x formation. The main NO_x species are transported, while all the other minor NO_x species are tabulated. The minor NO_x species that feature a single-peak mass fraction profile in the flame only are tabulated using the self-similar approach, whereas the raw profiles are stored for all the other NO_x species. A perfect agreement with the fully-detailed chemistry is obtained. With this second approach, the progress variable has been modified to include the main NO_x species, to preserve a correct precision when accessing the table in the burnt gases.

Simulation of methane-air edge-flames

The HTTC solver has been tested on laminar edge-flames, a challenging configuration with strong gradients of mixture fraction where classic tabulated chemistry methods, using tables based on premixed flames, usually fail. The 2D simulated case is a methane jet issuing from a slot injector, burnt with a co-flow of air.

In edge flames, the flammability limits are extended beyond the usual limits of the 1D premixed flames, which means that chemical reactions and heat release occur and radical species are present in zones where the equivalence ratio exceeds the boundaries of the 1D flame database. A prolongation of the table is thus needed to take this phenomenon into account in the simulations performed with the HTTC solver. Two kinds of approach have been proposed to generate the missing parts of the table: using the 1D flame solver beyond the flammability limits of the 1D premixed flames, or extrapolating the data of the 1D flame database beyond the 1D flammability limits. Both of them produce similar results, but the first one may be preferred because it is independent from the choice of a function to extrapolate. Moreover, the prolonged tables contain around 5-6 less species than the tables with boundaries included in the 1D flammability limits. This has a very limited impact on the performances of the solver, the chemical timestep being still larger than the convective timestep, and consequently, the global cost of the simulations is still approximately 5 times smaller with HTTC than the cost induced by the FTC solver.

In spite of a diffusion of the radical species orthogonally to the mixture fraction isolines, observed in the reference simulations performed with FTC but not considered in the HTTC tables, rather good agreements on the mass fractions, the temperature and the propagation speed have been obtained between the flames simulated with HTTC and FTC. The FPI solver was not able to model the impact of the mixture fraction gradient on the propagation speed of the edge flame. The values of the propagation speed calculated at the flame tip with FPI were overestimated, and close to the 1D flame speed.

Finally, the concept of self-similarity in hydrocarbon flames have been reinforced, by showing that the reduced mass fraction profiles of the radical species, plotted along mixture fraction isolines in the reference edge-flames simulated with FTC, are properly overlaid on each other, but also match the 1D profiles.

6.2 Perspectives

Some points should be tackled first to carry on the development of HTTC. They are listed below.

Validation of HTTC on edge-flames

On the edge-flame simulations, HTTC provided results similar to the reference computed with a fully-transported chemistry solver, but with a reduced computation cost, and predicted more accurately the propagation speed than the FPI method. It would be interesting to perform the same simulations with a reduced kinetic scheme containing 15 species (roughly the number of transported species with HTTC), which is expected to induce computation cost similar to HTTC (or barely smaller, since there is no table to read and few less reaction rates to compute). If noticeable differences were observed, it would confirm that the contribution of the radical species (i.e. the tabulated species with HTTC), absent from the reduced scheme, are essential for the accuracy of the edge-flames simulated in this study, and would account for the use of HTTC.

In this work, the edge-flame has been chosen because it is a challenging configuration for classic tabulated chemistry methods. However, more configurations with an intermediate level of complexity could be tested, between the fully-premixed flame and the strongly stratified edge-flame, to assess the effect of phenomena that are negligible compared to the diffusion induced by the mixture fraction

gradients. In particular, such configurations would be more adapted for the analysis of the differential diffusion effects.

Combustion of heavy fuels with very large mechanisms

It has been shown that the larger is the number of the species involved in the kinetic mechanism, the larger is the amount of time saved by using HTTC, compared to the FTC solver. As a proof of concept, a few time steps of the simulation of an iso-octane/air flame, with a very detailed kinetic mechanism (857 species), have been performed with the HTTC solver using a partial table, to evaluate the computation cost per time step. Full tables, generated on large ranges of fresh gas temperature, pressure and equivalence ratio, should be built up to check that the self-similarity can still be applied for the full set of species and conditions, which is essential for such a kinetic mechanism, given the number of tabulated species. Full simulations should then be performed to complete the validation of HTTC on 1D flames, and to confirm that the chemical time step is still higher than the convective time step.

Improvement of the table building

The self-similarity of the mass fraction profiles have been largely observed in all the flames simulated in this work, whatever the flame structure, the fuel or the kinetic mechanism, and have been used to reduce the size of the HTTC tables. However, the use of customized corrections is obligatory to fix small discrepancies between the profiles near the equilibrium value of the progress variable, to avoid unwanted non-zero reaction rates in the burnt gases. A good agreement between HTTC and FTC is obtained when enabling those corrections, but small discrepancies are still observed for the rich flames. More advanced mathematical transformations could be developed to reduce the mass fraction profiles, and decrease the self-similarity errors, removing the need for customized corrections. More advanced transformations could mean more reduction parameters to store, but lower self-similarity errors definitely account for slightly larger tables.

Moreover, discrepancies have been observed between the scatter-plots of radical mass fractions $Y_k(Y_c, Z)$ extracted from the reference simulation and the same maps $Y_k(Y_c, Z)$ extracted from the table. These discrepancies may be responsible for the differences between HTTC and FTC in the edge-flame simulations, and are attributed to gradients of mixture fraction, not taken into account when building the HTTC table. Methods like MFM [158], which considers the fluxes accross the iso-mixture fraction surfaces by adding scalar dissipation rates as new dimensions of the table, could then be used to build the tables. A methodology to build HTTC tables from 2D flames featuring gradients of mixture fraction could also be examined. Furthermore such an approach would remove the requirement for a prolongation of the tables.

Large-Eddy Simulation

During this Ph.D. thesis, laminar flames have been simulated, by solving the DNS form of the transport equations. The next major milestone in the development of HTTC is the modification of the HTTC solver to carry out LES simulations. This step will be essential for the HTTC solver to be able to simulate real complex configurations. Filtering the table will be the first task to be done. In [188], it is briefly shown that the filtering process preserves the self-similarity of the reduced mass fraction profiles. The issue of the spatial resolution of the mesh should also be investigated. With HTTC, small enough cells are still needed to read the tabulated species mass fractions with a correct precision, especially in decane-air flames, where very thin mass fraction profiles are met. This resolution will be incompatible with the usual cell size used in LES computations, and additional modeling (e.g. a flame thickening model) may be required.

In this work, all the simulations have been carried out using a compressible code. The implementation of HTTC in a low-Mach code could be done. In this case, the convective time step would be several orders of magnitude above its value in a compressible code (because the speed of sound is not involved in its calculation), and thus it would be interesting to evaluate whether the chemical timestep is still larger or smaller than the incompressible convective time step. If it were smaller, implicit numerical schemes could be used for the time advancement of the transport equations. However, the transported species only would have to be solved by the implicit solver, instead of the full set of species, ensuring a still reasonable cost per iteration. Moreover, the diffusive time step could also become an issue, because very light species with small Lewis numbers, like H and H₂, are transported. Thus, proper numerical methods should also be used to compute the diffusive part of the species transport equations.

Mesh refinement study

In order to limit the computation cost, a sensitivity study to the cell size has been performed, to determine the proper cell size for the 1D computations done in Chapter 4, and for the edge flames simulated in Chapter 5, when the different solvers of SiTCom-B are used.

In this work, the cell size is dominated by the flame thickness. Enough points must be present in the flame front to compute the radical mass fractions and source terms, and the heat release rate, with a good precision. The flame thickness δ depends on the equivalence ratio ϕ , the pressure P and the temperature of the reactants T_u (Fig. 4.16). Indeed, the value of δ is minimal at stoichiometry, while it can for instance be two times larger for lean mixtures. The influence of T_u is quite small, the methane-air flames being only 25% thinner for $T_u = 700$ K, compared to $T_u = 300$ K. However, δ is strongly dependent on P , since it is around 10 times smaller at 20 bar than at 1 bar. Consequently, the mesh refinement study has been carried out on stoichiometric flames, for the two values of pressure at the bounds of the interval used to generate the flame databases (1 and 20 bar). In Chapter 4, the cell size has been changed only when pressures varied. Here the computations are run both for methane and decane flames, because independently from δ , radical species with thinner mass fraction profiles are met in decane flames.

The results obtained with the different mesh refinements using the HTTC solver of SiTCom-B are compared with the reference from REGATH, computed with very small cells ($<0.5 \mu\text{m}$). Several cell sizes have been investigated: 10, 20, 50 and 100 μm at 1 bar, and 1, 5 and 10 μm at 20 bar. The results at 1 bar are displayed on Fig. A.1 for the methane flames and Fig. A.2 for the decane flames. The velocity of the flow, the temperature, the mass fraction of the main species (CO, CO₂ and H₂O), the mass fraction of radical species and the reduced pressure $P^*(x) = 1 - P(x)/P(x_{\min})$ are plotted.

For the methane flames, both the results for 10 μm and 20 μm match perfectly the reference, and no significant difference is observed with those two meshes. With a size of 50 μm , the results are still in good agreement with REGATH, but the thinnest species mass fraction profiles (e.g. CH) are described with a few points only, and some small spurious numerical oscillations appear on the pressure profile. The cell size of 100 μm is too large to simulate properly methane-air flames at 1 bar. Even if the temperature and the mass fractions of the main species are still correct, discrepancies with the reference on the velocity are observed, and larger spurious numerical oscillations of around 10 Pa prevents from correctly computing the pressure jump accross the flame. Consequently, a cell size of 20 μm has been selected for the 1D simulations performed at 1 bar. At 20 bar, the cell size of 1 μm gave the best results, according to the same criteria (figures not shown). At 5 bar, the size has been set to 5 μm . The selected cell sizes are gathered in Tab. A.1.

In decane flames, species with thinner mass fraction profiles are met. Most of them are heavy species (number of carbon atoms > 6), like AC₇H₁₅ (Fig. A.2(e)). One extra level of mesh refinement is thus needed to compute decane flames with a correct precision, and a size of 10 μm has been selected at 1 bar. At 20 bar, a similar set of computation have shown that a size of 1 μm is well-suited (figures not shown). This is consistent with the flame thickness, also 10 times smaller at 20 bar.

This study has been performed with the HTTC solver, but similar levels of refinement are required for the FTC solver, because in both solvers, the radical species must be described with enough points

Pressure	Fuel	
	Methane	Decane and kerosene surrogate
1 bar	20 μm (50 μm in Ch. 5)	10 μm
5 bar	5 μm	-
20 bar	1 μm	1 μm

Table A.1 – Cell size in the flame front chosen for the 1D computations in Chapter 4 and the edge flame simulations in Chapter 5, depending on the pressure and the fuel considered. The same mesh resolution is used for every solvers.

(whether they are transported or tabulated) to calculate the reaction rates of the detailed kinetic mechanism with a good precision. However, with FPI, the reaction rates are not computed during the actual simulations, and the only requirement is to describe with enough points the source term of the progress variable, which is larger than the radical species profiles. Consequently, larger cell sizes could safely be set with FPI, but the same size has been set for HTTC, FTC and FPI.

For the simulations of the edge flames presented in Chapter 5, a size of 50 μm has been set, to get reasonable computation cost. Note indeed that with HTTC, the bottleneck is the convective time step, so reducing the cell size would also reduce the global time step, in addition to the increase of the total number of cells to compute. Then using a size 50 μm instead of 20 μm dramatically reduces the duration of a simulation.

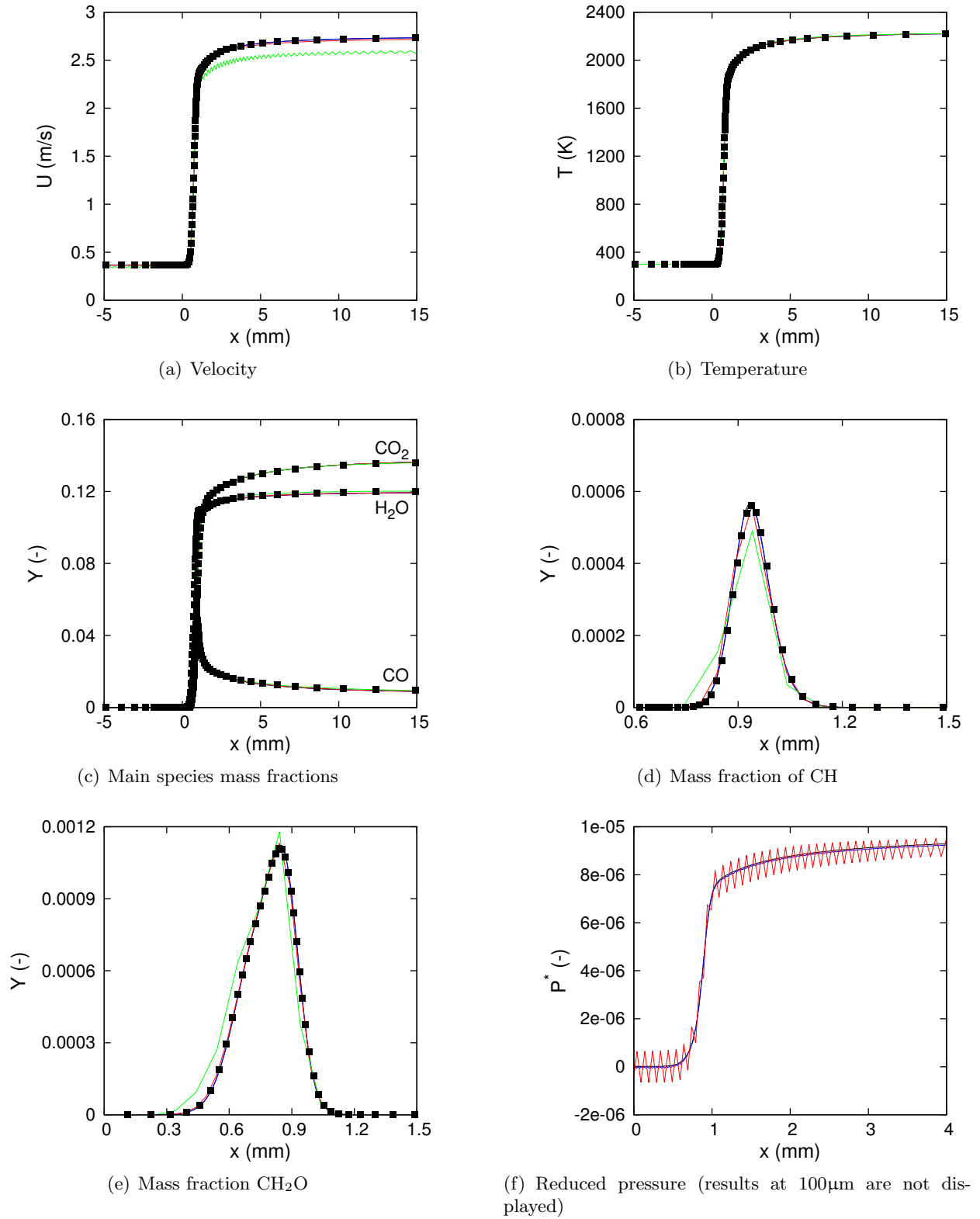


Figure A.1 – Methane-air flame computed with REGATH and the FTC solver in SiTComb-B, with different cell sizes in the flame front, at $\phi = 1$, $P = 1$ bar and $T_u = 300$ K. ■ REGATH. Lines: SiTCom-B (— $10\mu\text{m}$, — $20\mu\text{m}$, — $50\mu\text{m}$, — $100\mu\text{m}$).

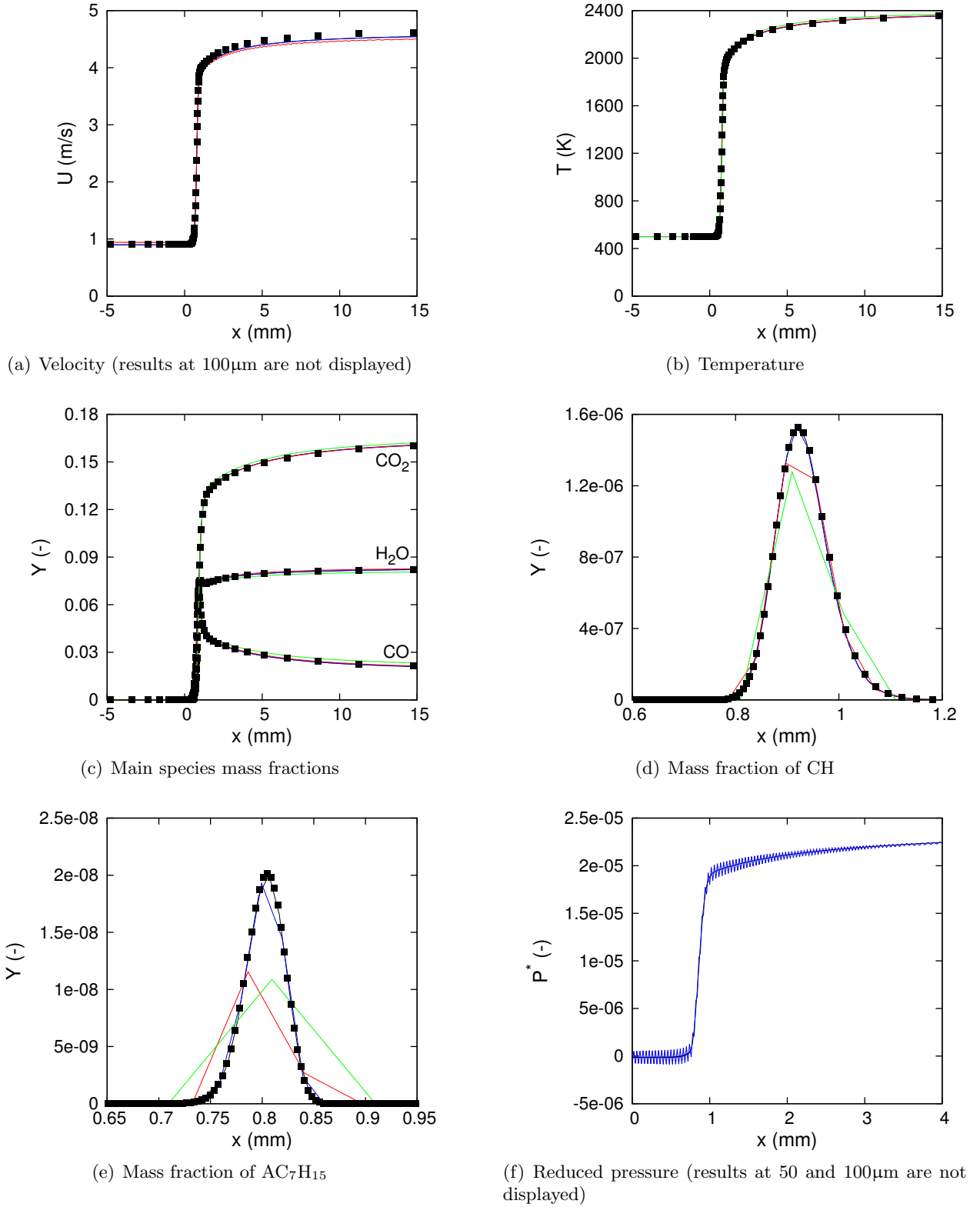


Figure A.2 – Decane-air flame computed with REGATH and the FTC solver in SiTComb-B, with different cell sizes in the flame front, at $\phi = 1$, $P = 1$ bar and $T_u = 300$ K. ■ REGATH. Lines: SiTCom-B (— 10 μ m, — 20 μ m, — 50 μ m, — 100 μ m).

Additional data for Chapter 5

This appendix contains additional figures for the Chapter 5 on the simulation of edge flames.

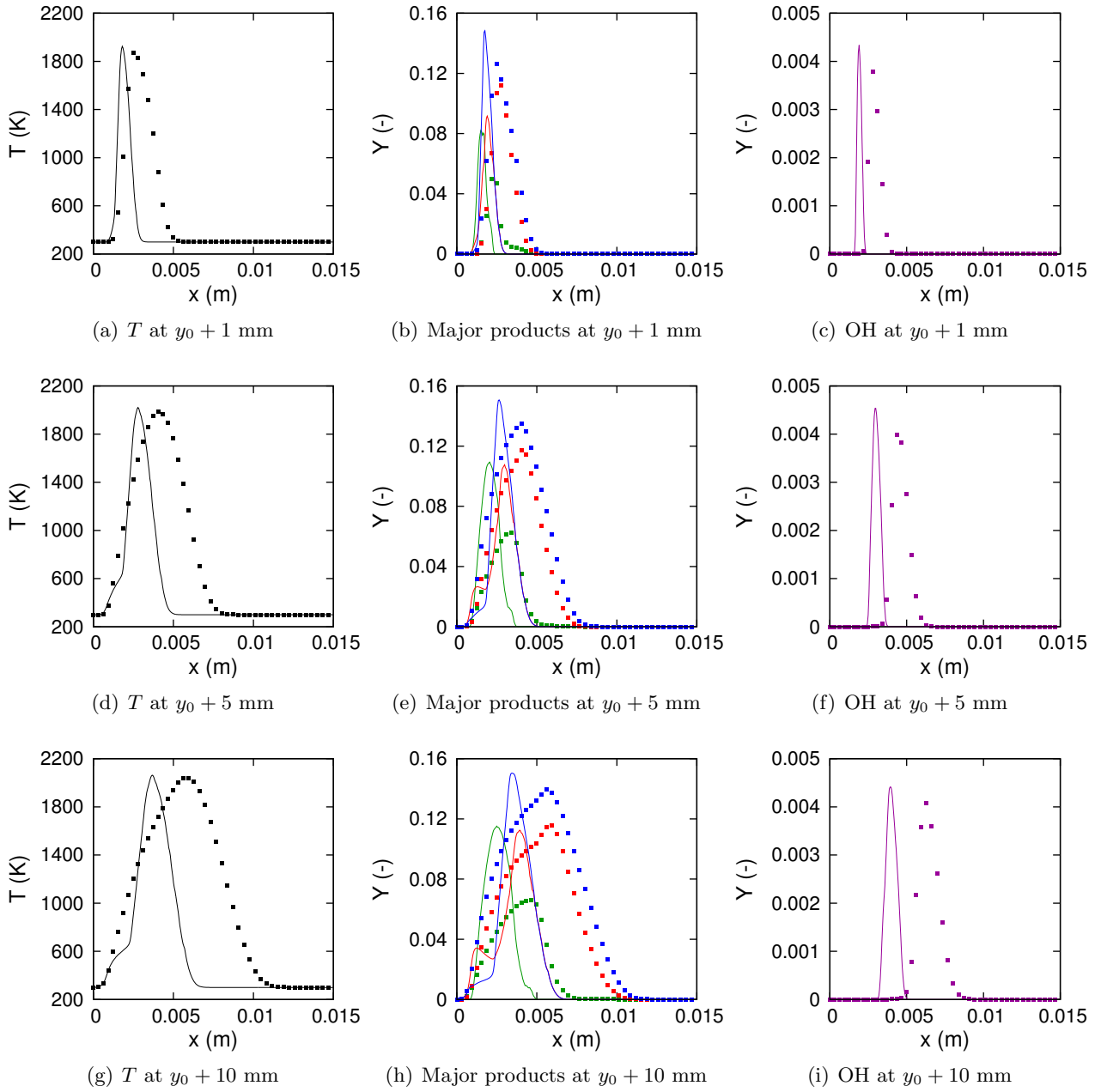


Figure B.1 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO₂ in red and H₂O×1.2 in blue) and OH (purple) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and FPI (lines) simulations, with a co-flow speed of 0.6 m/s.

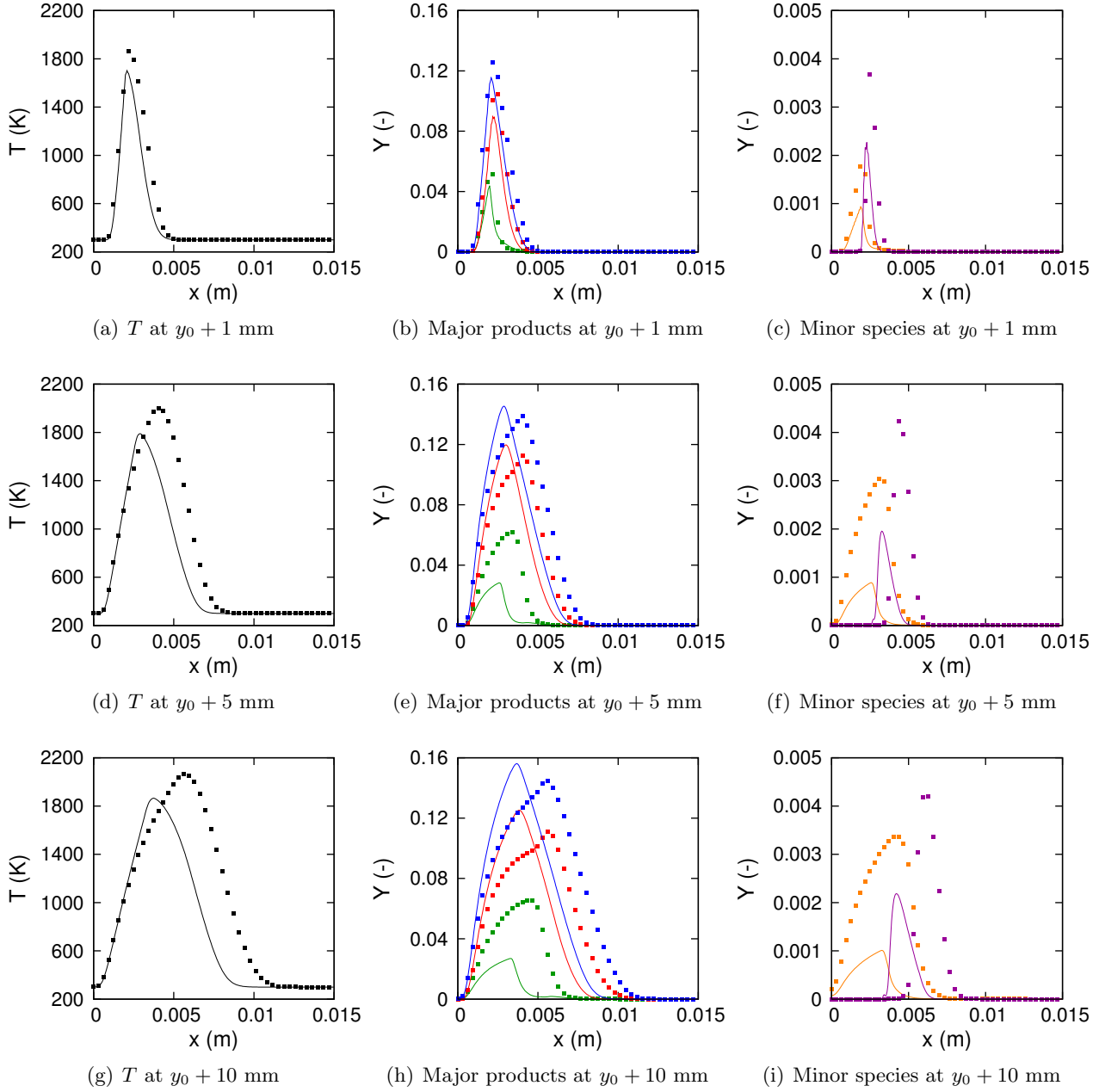


Figure B.2 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO₂ in red and H₂O×1.2 in blue) and minor species (OH in purple and H₂ in orange) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and HTTC (lines) simulations. The HTTC table is prolonged using the method P2a with linear extrapolations on the lean side (simu HTTC1.2). The co-flow speed is 0.4 m/s.

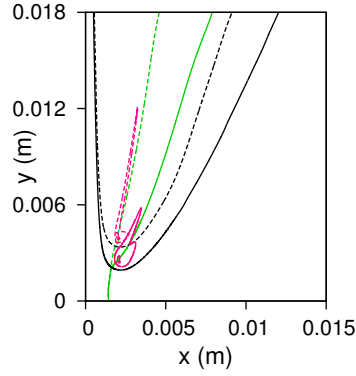


Figure B.3 – Isolines of stoichiometric mixture fraction (green) and of progress variable ($Y_c = 0.005$, black), in flames computed for a co-flow velocity of 0.4 m/s, with FTC (solid lines) and HTTC (dashed lines) (with a locally computed Z and $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$). The HTTC table is prolonged using the method P2a, with linear extrapolations on the lean side (simu. HTTC2.1).

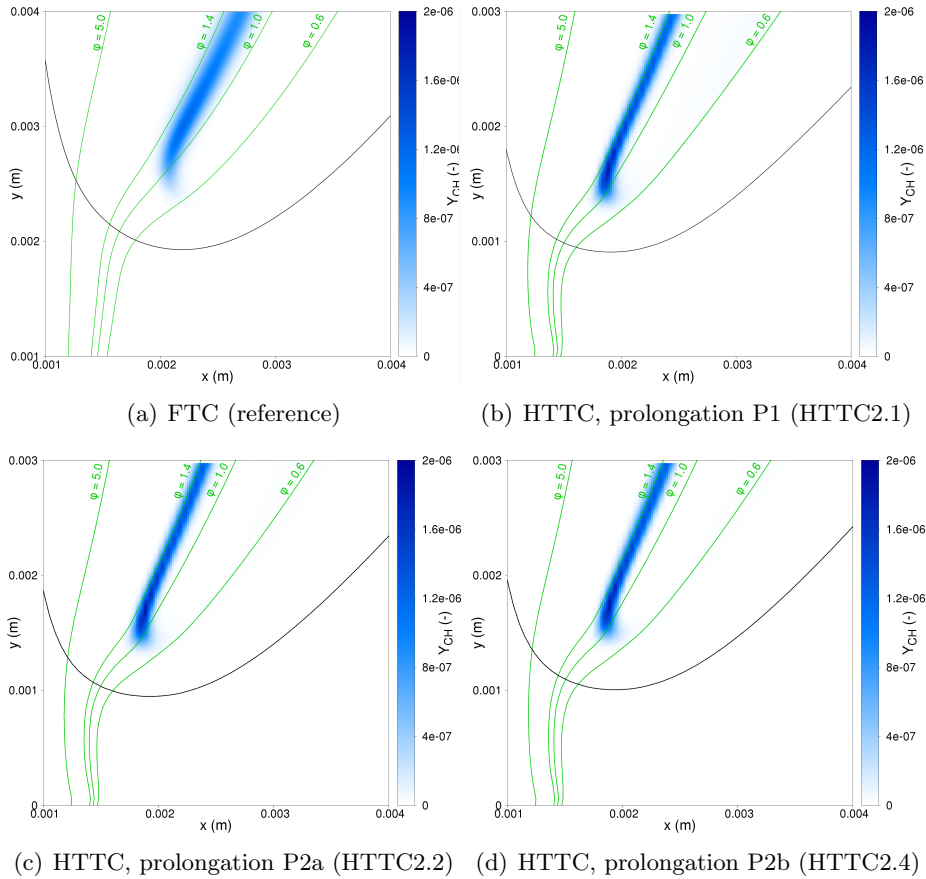


Figure B.4 – Mass fraction of CH in the flame tip, in the flames simulated with FTC and HTTC (locally computed Z and $Y_c = Y_{CO} + Y_{CO_2}$), for a co-flow velocity of 0.4 m/s. Several isolines of mixture fraction (green) and an isoline of progress variable ($Y_c = 0.005$, in black) are also displayed.

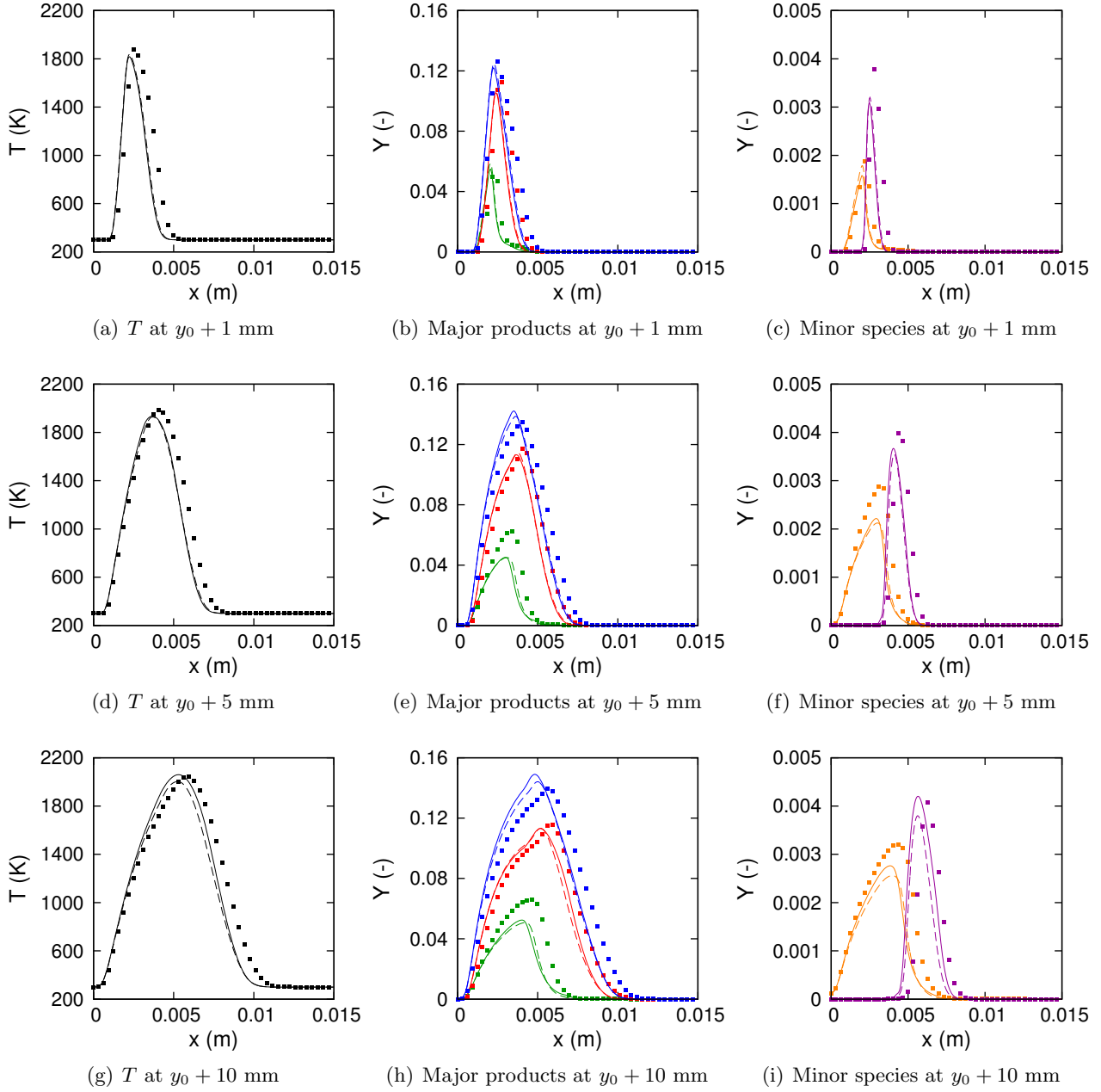


Figure B.5 – Radial profiles of temperature (black), major products (CO in green, CO₂ in red and H₂O×1.2 in blue) and minor species (OH in purple and H₂ in orange) at different heights above the flame tip (located at a height y_0), for the FTC (square symbols) and HTTC (lines) simulations, with a co-flow speed of 0.6 m/s. Solid lines: locally computed Z (simu. HTTC3.2-06), dashed lines: transported Z (HTTC3.3-06).

Appendix C

Correction of the local value of the mixture fraction

It has been shown in Chapter 5 that, because of the differential diffusion effects, the value of the mixture fraction Z varies across the flame, and therefore differs from its value Z_u in the fresh and the burnt gases (Fig. 5.33). In the frame of HTTC, the local value of Z used as a control parameter for the table and computed from the species mass fractions (e.g. using Bilger's definition), shows deviations with the value of Z_u that should be actually used to access the table, the latter being defined by $Y_m(Y_c, Z_u)$. No significant effect of this phenomenon has been observed in the edge flames presented in Chapter 5, because of the strong mixture fraction gradients met in this configuration. However, it creates a feedback loop in 1D premixed flames when Z is computed locally, where the wrong value of $Z \neq Z_u$ used to access the table leads to inconsistent values of the mass fractions of the tabulated radical species, which in turn leads to even more erroneous values of Z . Mass conservation is not ensured and totally wrong results are obtained (Fig. 5.34). The same issue is also expected to happen in flames with low stratification. Note that for the 1D results presented in Chapter 4, a constant value $Z(Y_c) = Z_u, \forall Y_c$ has been fixed.

The outline of a method to reconstruct locally the proper value of the unburnt mass fraction Z_u (or similarly the equivalence ratio ϕ) to access the table is briefly presented here. For the sake of clarity, the pressure P and the fresh gas temperature T_u are here supposed constant, but could be added as dimensions of the table. Since the local value of Z based on Bilger's definition cannot be used directly, it is here proposed to use data obtained from the transported species. The idea is to build a new control parameter $Y^*(Y_M)$, such that Z_u can be known from Y_c and Y^* . Thus badly computed values of Z are replaced by $Z_u(Y_c, Y^*)$, and the tabulated mass fractions are expressed as $Y_k(Y_c, Z_u(Y_c, Y^*)), \forall k \in m$.

The variable Y^* must be built such as there is a unique value of $Z_u(Y_c, Y^*)$ for a given set (Y_c, Y^*) . Such a condition can be met by setting Y^* equal to the product of linear combinations of the transported species :

$$Y^* = \sum_{k \in M} \beta_k Y_k \times \sum_{k \in M} \gamma_k Y_k \quad (\text{C.1})$$

where the β_k and γ_k are real numbers. Several combinations have been tested. For some of them, the uniqueness is not ensured. For example, with $Y^* = Y_{\text{CH}_4} \times Y_{\text{CO}_2}$, Z_u can have any value for a given set (Y_c, Y^*) , when $Y_c < 0.03$ (Fig. C.1(b)). With $Y^* = Y_{\text{CH}_4} \times (Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2})$ however, there is only one possible value of Z_u for a given set (Y_c, Y^*) , $\forall Y_c \in]0, Y_{c,eq}[$ (Fig. C.1(a)). It is not true for $Y_c = 0$ and $Y_c = Y_{c,eq}$, but for these points, the local value of Z can be safely used because $Z(Y_c = 0) = Z_u$ and $Z(Y_c = Y_{c,eq}) = Z_u$.

The method proposed here is thus to chose a definition for Y^* , and to store $Z_u(Y_c, Y^*)$ in the table during the table generation step. During the simulation, instead of computing Z with Bilger's definition and using it to access the table, Y^* is computed from the transported species and used in addition of Y_c to get Z_u , in turn used to read the tabulated mass fractions. This method has been successfully used in a 1D stoichiometric premixed methane-air flame (Fig. C.2).

The self-similarity property of the reduced Y^* profiles is highlighted on Fig. C.3, and can be used to downsize the table, in addition to the self-similarity of the species mass fraction profiles. In this case

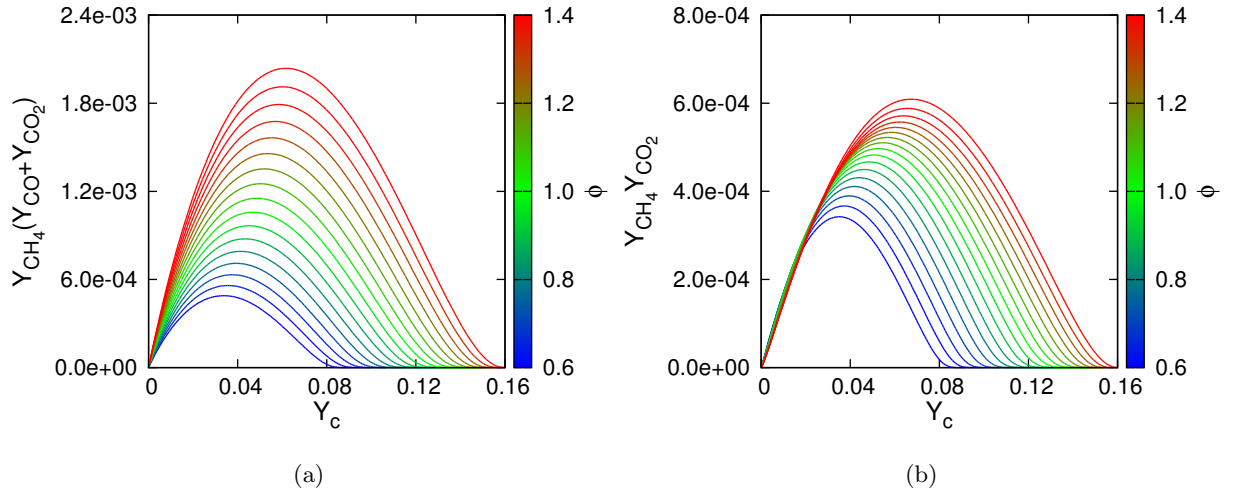


Figure C.1 – Product of the methane mass fraction with linear combinations of product mass fractions, versus the progress variable $Y_c = Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}$, in several methane flames, for $\phi \in [0.6, 1.4]$, $P = 1$ bar, $T_u = 300$ K.

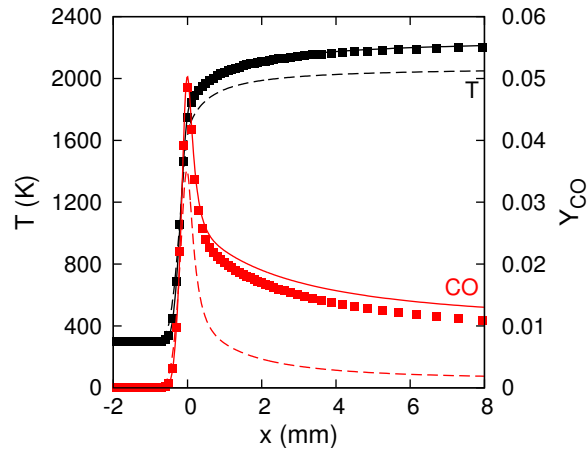


Figure C.2 – Temperature and CO mass fraction in a stoichiometric methane flame ($P = 1$ bar, $T_u = 300$ K). Squares : reference detailed chemistry from REGATH. Dashed lines : HTTC solver in SiTCom-B, with Z computed locally without any correction, solid line : idem, using a corrected local value of Z .

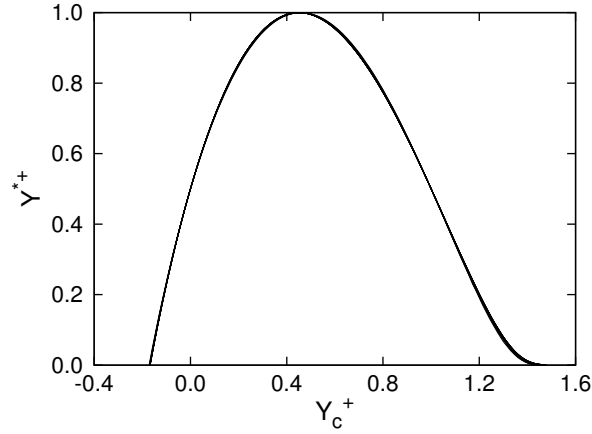


Figure C.3 – Reduced profiles of the variable $Y^* = Y_{\text{CH}_4}(Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2})$, in methane flames for several values of $\phi \in [0.6, 1.4]$.

however, the value of Z_u is needed a priori to get the “non-reduced” data from the reduced profiles, and getting $Z_u(Y_c, Y^*)$ is not straightforward. A simple iterative procedure has then been implemented. An initial guess for Z_u is the value Z based on Bilger’s definition. It is used to get the tabulated value of Y^* . If the tabulated value is smaller (resp. larger) than the locally computed value, the guess for Z_u is increased (resp. decreased), to get a new tabulated value of Y^* . This loop is repeated until the tabulated and the local value of Y^* are equal (according to a given threshold), and the final value of Z_u is used to read the tabulated species mass fractions. The simulation of a methane-air flame showed that around 5 iterations are needed to converge to the proper value of Z_u . The method using the self-similarity of the Y^* profiles led to results similar to those obtained without self-similarity.

Bibliography

- [1] Règlement (CE) n°715/2007 du Parlement Européen et du Conseil, 2007.
- [2] *Convention on International Civil Aviation (3rd edition) - Annex 16 - Environmental Protection*, volume Volume II - Aircraft Engine Emissions. International Civil Aviation Organization, 2008.
- [3] CHEMKIN files for the mechanism of iso-octane developed at Lawrence Livermore National Laboratory. <https://combustion.llnl.gov/mechanisms/alkanes/iso-octane-version-3>, 2017.
- [4] International Energy Agency. Key world energy statistics. www.iea.org, 2015.
- [5] U. M. Ascher, S. J. Ruuth, and R. J. Spiteri. Implicit-explicit Runge-Kutta methods for time-dependent partial differential equations. *Applied Numerical Mathematics*, 25(2):151–167, 1997.
- [6] P. Auzillon, O. Gicquel, N. Darabiha, D. Veynante, and B. Fiorina. A filtered tabulated chemistry model for LES of stratified flames. *Combustion and Flame*, 159(8):2704–2717, 2012.
- [7] R. Azzoni, S. Ratti, S. K. Aggarwal, and I. K. Puri. The structure of triple flames stabilized on a slot burner. *Combustion and Flame*, 119(1):23–40, 1999.
- [8] K. Bagrinovskii and S. Godunov. Difference schemes for multidimensional problems. *Dokl. Akad. Nauk USSR*, 115:431–433, 1957.
- [9] F. Baillot, D. Durox, and D. Demare. Experiments on imploding spherical flames: effects of curvature. *Proceedings of the Combustion Institute*, 29(2):1453–1460, 2002.
- [10] J. B. Bell, N. J. Brown, M. S. Day, M. Frenklach, J. F. Grcar, R. M. Propp, and S. R. Tonse. Scaling and efficiency of PRISM in adaptive simulations of turbulent premixed flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28(1):107–113, 2000.
- [11] P. Bénard. *Analyse et amélioration d’une chambre de combustion centimétrique par simulation aux grandes échelles*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2015.
- [12] B. Bhattacharjee, D. A. Schwer, P. I. Barton, and W. H. Green. Optimally-reduced kinetic models: reaction elimination in large-scale kinetic mechanisms. *Combustion and Flame*, 135(3):191–208, 2003.
- [13] R. W. Bilger, S. H. Stårner, and R. J. Kee. On reduced mechanisms for methane-air combustion in nonpremixed flames. *Combustion and Flame*, 80(2):135–149, 1990.
- [14] R. B. Bird, W. E. Stewart, and E. N. Lightfoot. *Transport phenomena*. John Wiley & Sons, New York, 1960.
- [15] M. Boileau, G. Staffelbach, B. Cuenot, T. Poinsot, and C. Bérat. LES of an ignition sequence in a gas turbine engine. *Combustion and Flame*, 154(1):2–22, 2008.

- [16] H. Bongers, J. A. Van Oijen, L. M. T. Somers, and L. P. H. De Goeij. The flamelet generated manifold method applied to steady planar partially premixed counterflow flames. *Combustion Science and Technology*, 177(12):2373–2393, 2005.
- [17] L. Bouheraoua. *Simulation aux grandes échelles et modélisation de la combustion supersonique*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2014.
- [18] J. Boulanger. *Caractérisation de l’extrémité d’une flamme de diffusion. Analyse asymptotique et simulation directe de la combustion partiellement prémélangée*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2002.
- [19] J. F. Bourgouin, J. P. Moeck, T. Schuller, and S. Candel. A new pattern of instability observed in an annular combustor: The slanted mode. *Proceedings of the Combustion Institute*, 35(3):3237–3244, 2015.
- [20] J. W. Bozzelli and A. M. Dean. O+NNH: A possible new route for NO_x formation in flames. *International Journal of Chemical Kinetics*, 27(11):1097–1109, 1995.
- [21] A. M. Briones, S. K. Aggarwal, and V. R. Katta. Effects of H₂ enrichment on the propagation characteristics of CH₄–air triple flames. *Combustion and Flame*, 153(3):367–383, 2008.
- [22] N. J. Brown, G. Li, and M. L. Koszykowski. Mechanism reduction via principal component analysis. *International Journal of Chemical Kinetics*, 29(6):393–314, 1997.
- [23] P. N. Brown, G. D. Byrne, and A. C. Hindmarsh. Vode : A variable-coefficient ode solver. *SIAM journal on scientific and statistical computing*, 10(5):1038–1051, 1989.
- [24] J. Buckmaster. Edge-flames. *Progress in Energy and Combustion Science*, 28(5):435–475, 2002.
- [25] A. Büki, T. Perger, T. Turányi, and U. Maas. Repro-modelling based generation of intrinsic low-dimensional manifolds. *Journal of Mathematical Chemistry*, 31(4):345–362, 2002.
- [26] V. Bykov and U. Maas. The extension of the ILDM concept to reaction–diffusion manifolds. *Combustion Theory and Modelling*, 11(6):839–862, 2007.
- [27] R. Cabra, J. Y. Chen, R. W. Dibble, A. N. Karpetis, and R. S. Barlow. Lifted methane–air jet flames in a vitiated coflow. *Combustion and Flame*, 143(4):491–506, 2005.
- [28] S. Candel, T. Schmitt, and N. Darabiha. Progress in transcritical combustion: Experimentation, modeling and simulation. *23rd ICDERS, Irvine*, 2011.
- [29] Carbon Dioxide Information Analysis Center. <http://cdiac.ornl.gov/>, 2016.
- [30] Centre Interprofessionnel Technique d’Etudes de la Pollution Atmosphérique. Rapport SECTEN d’Avril 2015. www.citepa.org/fr/activites/inventaires-des-emissions/secten, 2015.
- [31] J. H. Chen, E. R. Hawkes, R. Sankaran, S. D. Mason, and H. G. Im. Direct numerical simulation of ignition front propagation in a constant volume with temperature inhomogeneities: I. fundamental analysis and diagnostics. *Combustion and Flame*, 145(1):128–144, 2006.
- [32] C. W. Choi and I. K. Puri. Response of flame speed to positively and negatively curved premixed flames. *Combustion Theory and Modelling*, 7(2):205–220, 2003.
- [33] S. H. Chung. Stabilization, propagation and instability of tribrachial triple flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(1):877–892, 2007.
- [34] S. H. Chung and C. K. Law. An integral analysis of the structure and propagation of stretched premixed flames. *Combustion and Flame*, 72(3):325–226, 1988.
- [35] P. Clavin. Dynamic behavior of premixed flame fronts in laminar and turbulent flows. *Progress in Energy and Combustion Science*, 11(1):1–59, 1985.

- [36] T. P. Coffee and J. M. Heimerl. Transport algorithms for premixed, laminar steady-state flames. *Combustion and Flame*, 43:273–289, 1981.
- [37] T. P. Coffee, A. J. Kotlar, and M. S. Miller. The overall reaction concept in premixed, laminar, steady-state flames. I. Stoichiometries. *Combustion and Flame*, 54(1-3):155–169, 1983.
- [38] S. M. Correa. A review of NO_x formation under gas-turbine combustion conditions. *Combustion Science and Technology*, 87(1-6):329–362, 1993.
- [39] H. F. Coward and G. W. Jones. Limits of flammability of gases and vapors. Technical report, DTIC Document, 1952.
- [40] K. Criner. *Stabilisation de flammes de diffusion turbulentes assistée par plasma hors-équilibre et par champ électrique*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2008.
- [41] H. J. Curran, P. Gaffuri, W. J. Pitz, and C. K. Westbrook. A comprehensive modeling study of n-heptane oxidation. *Combustion and Flame*, 114(1):149–177, 1998.
- [42] H. J. Curran, P. Gaffuri, W. J. Pitz, and C. K. Westbrook. A comprehensive modeling study of iso-octane oxidation. *Combustion and Flame*, 129(3):253–280, 2002.
- [43] P. Dagaut and M. Cathonnet. The ignition, oxidation, and combustion of kerosene : a review of experimental and kinetic modeling. *Progress in Energy and Combustion Science*, 32:48–92, 2006.
- [44] S. G. Davis, H. Wang, K. Brezinsky, and C. K. Law. Laminar flame speeds and oxidation kinetics of benzene-air and toluene-air flames. *Symposium (International) on Combustion*, 26(1):1025–1033, 1996.
- [45] G. G. De Soete. Overall reaction rates of NO and N₂ formation from fuel nitrogen. *Symposium (International) on Combustion*, 15(1):1093–1102, 1975.
- [46] G. Dixon-Lewis. Flame structure and flame reaction kinetics. II. transport phenomena in multi-component systems. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 307(1488):111–135, 1968.
- [47] P. Domingo, L. Vervisch, S. Payet, and R. Hauguel. DNS of a premixed turbulent V flame and LES of a ducted flame using a FSD-PDF subgrid scale closure with FPI-tabulated chemistry. *Combustion and Flame*, 143(4):566–586, 2005.
- [48] P. Domingo, L. Vervisch, and J. Réveillon. DNS analysis of partially premixed combustion in spray and gaseous turbulent flame-bases stabilized in hot air. *Combustion and Flame*, 140(3):172–195, 2005.
- [49] P. Domingo, L. Vervisch, and D. Veynante. Large-eddy simulation of a lifted methane jet flame in a vitiated coflow. *Combustion and Flame*, 152(3):415–432, 2008.
- [50] A. Donini, R. J. M. Bastiaans, J. A. Van Oijen, and L. P. H. De Goey. Differential diffusion effects inclusion with flamelet generated manifold for the modeling of stratified premixed cooled flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 35(1):831–837, 2015.
- [51] F. Ducros, F. Laporte, T. Souleres, V. Guinot, P. Moinat, and B. Caruelle. High-order fluxes for conservative skew-symmetric-like schemes in structured meshes: application to compressible flows. *Journal of Computational Physics*, 161(1):114–139, 2000.
- [52] D. Durox, S. Ducruix, and S. Candel. Experiments on collapsing cylindrical flames. *Combustion and Flame*, 125(1):982–1000, 2001.
- [53] T. Echekki and J. H. Chen. Structure and propagation of methanol–air triple flames. *Combustion and Flame*, 114(1):231–245, 1998.

- [54] T. Echekki and J. H. Chen. Direct numerical simulation of autoignition in non-homogeneous hydrogen-air mixtures. *Combustion and Flame*, 134(3):169–191, 2003.
- [55] EDF. Statistiques sur l'énergie nucléaire en France. <https://www.edf.fr/groupe-edf/espaces-dedies/l-energie-de-a-a-z/tout-sur-l-energie/produire-de-l-electricite/le-nucleaire-en-chiffres>, 2015.
- [56] T. Edwards and L. Q. Maurice. Surrogate mixtures to represent complex aviation and rocket fuels. *Journal of Propulsion and Power*, 17(2):461–466, 2001.
- [57] L. Elliott, D. B. Ingham, A. G. Kyne, N. S. Mera, M. Pourkashanian, and S. Whittaker. Reaction mechanism reduction and optimisation for modelling aviation fuel oxidation using standard and hybrid genetic algorithms. *Computer and Chemical Engineering*, 30(5):889–900, 2006.
- [58] M. Embouazza. *Etude de l'Auto-Allumage par Réduction des Schémas Cinétiques Chimiques. Application à la Combustion Homogène diesel*. PhD thesis, Ecole Centrale Paris, 2005.
- [59] J. L. Emdee, K. Brezinsky, and I. Glassman. A kinetic model for the oxidation of toluene near 1200 K. *The Journal of Physical Chemistry*, 96(5):2151–2161, 1992.
- [60] A. Ern and V. Giovangigli. *Multicomponent transport algorithms*. Springer Verlag, Heidelberg, 1994.
- [61] B. Farcy. *Analyse des mécanismes de destruction non-catalytique des Oxydes d'Azote (DeNOx) et application à la simulation aux grandes échelles (LES) d'un incinérateur*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2015.
- [62] C. P. Fenimore and H. A. Fraenkel. Formation and interconversion of fixed-nitrogen species in laminar diffusion flames. *Symposium (International) on Combustion*, 18(1):143–149, 1981.
- [63] B. Fiorina, R. Baron, O. Gicquel, D. Thévenin, S. Carpentier, and N. Darabiha. Modelling non-adiabatic partially premixed flames using flame-prolongation of ILDM. *Combustion Theory and Modelling*, 7(3):449–470, 2003.
- [64] B. Fiorina, O. Gicquel, L. Vervisch, S. Carpentier, and N. Darabiha. Approximating the chemical structure of partially premixed and diffusion counterflow flames using FPI flamelet tabulation. *Combustion and Flame*, 140(3):147–160, 2005.
- [65] B. Fiorina, O. Gicquel, and D. Veynante. Turbulent flame simulation taking advantage of tabulated chemistry self-similar properties. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(2):1687–1694, 2009.
- [66] B. Fiorina, R. Vicquelin, P. Auzillon, N. Darabiha, O. Gicquel, and D. Veynante. A filtered tabulated chemistry model for LES of premixed combustion. *Combustion and Flame*, 157(3):465–475, 2010.
- [67] A. Fog. Instruction tables: Lists of instruction latencies, throughputs and micro-operation breakdowns for Intel, AMD and VIA CPUs. *Copenhagen University College of Engineering*, 2011.
- [68] R. Fournet, V. Warth, P. A. Glaude, F. Battin-Leclerc, G. Scacchi, and G. M. Come. Automatic reduction of detailed mechanisms of combustion of alkanes by chemical lumping. *International Journal of Chemical Kinetics*, 32(1):36–51, 2000.
- [69] B. Franzelli, B. Fiorina, and N. Darabiha. A tabulated chemistry method for spray combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 1(34):1659–1666, 2013.
- [70] B. Franzelli, E. Riber, M. Sanjosé, and T. Poinso. A two-step chemical scheme for kerosene–air premixed flames. *Combustion and Flame*, 157(7):1364–1373, 2010.

- [71] A. Frassoldati, S. Frigerio, E. Colombo, F. Inzoli, and T. Faravelli. Determination of NO_x emissions from strong swirling confined flames with an integrated CFD-based procedure. *Chemical Engineering Science*, 60(11):2851–2869, 2005.
- [72] J. Galpin, C. Angelberger, A. Naudin, and L. Vervisch. Large-eddy simulation of H₂-air auto-ignition using tabulated detailed chemistry. *Journal of Turbulence*, 9(13):1–21, 2008.
- [73] Y. Gao, Y. Liu, Z. Ren, and T. Lu. A dynamic adaptive method for hybrid integration of stiff chemistry. *Combustion and Flame*, 162(2):287–295, 2015.
- [74] O. Gicquel, N. Darabiha, and D. Thévenin. Laminar premixed hydrogen/air counterflow flame simulations using flame prolongation of ildm with differential diffusion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28(2):1901–1908, 2000.
- [75] O. Gicquel, D. Thévenin, M. Hilka, and N. Darabiha. Direct numerical simulation of turbulent premixed flames using intrinsic low-dimensional manifolds. *Combustion Theory and Modelling*, 3(3):479–502, 1999.
- [76] R. G. Gilbert and J. Luther, K. Troe. Theory of thermal unimolecular reactions in the fall-off range. II. weak collision rate constants. *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, 87(2):169–177, 1983.
- [77] G. Godel, P. Domingo, and L. Vervisch. Tabulation of NO_x chemistry for large-eddy simulation of non-premixed turbulent flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(1):1555–1561, 2009.
- [78] X. Gou, W. Sun, Z. Chen, and Y. Ju. A dynamic multi-timescale method for combustion modeling with detailed and reduced chemical kinetic mechanisms. *Combustion and Flame*, 157(6):1111–1121, 2010.
- [79] R. W. Grout, A. Gruber, C. S. Yoo, and J. H. Chen. Direct numerical simulation of flame stabilization downstream of a transverse fuel jet in cross-flow. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(1):1629–1637, 2011.
- [80] C. Guéret, M. Cathonnet, J.-C. Boettner, and F. Gaillard. Experimental study and modeling of kerosene oxidation in a jet-stirred flow reactor. *Symposium (International) on Combustion*, 23(1):211–216, 1991.
- [81] J.-C. Guibet. *Fuels and engines*. Editions Technip, Paris, 1999.
- [82] H. Guo, F. Liu, and G. J. Smallwood. A numerical study of laminar methane/air triple flames in two-dimensional mixing layers. *International Journal of Thermal Sciences*, 45(6):586–594, 2006.
- [83] R. K. Hanson and S. Salimian. Survey of rate constants in the N/H/O system. In *Combustion chemistry*, pages 361–421. Springer, 1984.
- [84] K. Harstad and J. Bellan. A model of reduced kinetics for alkane oxidation using constituents and species: Proof of concept for n-heptane. *Combustion and Flame*, 157(8):1594–1609, 2010.
- [85] K. Harstad and J. Bellan. A model of reduced oxidation kinetics using constituents and species: Iso-octane and its mixtures with n-pentane, iso-hexane and n-heptane. *Combustion and Flame*, 157(11):2184–2197, 2010.
- [86] K. Harstad and J. Bellan. Prediction of premixed, n-heptane and iso-octane unopposed jet flames using a reduced kinetic model based on constituents and light species. *Combustion and Flame*, 160(11):2404–2421, 2013.
- [87] C. Hasse and N. Peters. A two mixture fraction flamelet model applied to split injections in a DI Diesel engine. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(2):2755–2762, 2005.

- [88] T. J. Held, A.J. Marchese, and F. L. Dryer. A semi-empirical reaction mechanism for n-heptane oxidation and pyrolysis. *Combustion Science and Technology*, 123(1-6):107–146, 1997.
- [89] F. E. Hernández-Pérez, F. T. C. Yuen, C. P. T. Groth, and Ö. L. Gülder. LES of a laboratory-scale turbulent premixed Bunsen flame using FSD, PCM-FPI and thickened flame models. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(1):1365–1371, 2011.
- [90] J. O. Hirschfelder, C. F. Curtiss, and R. B. Byrd. *Molecular theory of gases and liquids*. John Wiley & Sons, New York, 1969.
- [91] H. Huang, M. Fairweather, J. F. Griffiths, A. S. Tomlin, and R. B. Brad. A systematic lumping approach for the reduction of comprehensive kinetic models. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(1):1309–1316, 2005.
- [92] M. Ihme, C. M. Cha, and H. Pitsch. Prediction of local extinction and re-ignition effects in non-premixed turbulent combustion using a flamelet/progress variable approach. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(1):793–800, 2005.
- [93] M. Ihme, A. L. Marsden, and H. Pitsch. Generation of optimal artificial neural networks using a pattern search algorithm: Application to approximation of chemical systems. *Neural Computation*, 20(2):573–601, 2008.
- [94] M. Ihme and H. Pitsch. Modeling of radiation and nitric oxide formation in turbulent non-premixed flames using a flamelet/progress variable formulation. *Physics of Fluids*, 20(5):055110, 2008.
- [95] M. Ihme and H. Pitsch. Prediction of extinction and reignition in nonpremixed turbulent flames using a flamelet/progress variable model: 1. a priori study and presumed PDF closure. *Combustion and Flame*, 155(1):70–89, 2008.
- [96] M. Ihme, C. Schmitt, and H. Pitsch. Optimal artificial neural networks and tabulation methods for chemistry representation in LES of a bluff-body swirl-stabilized flame. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(1):1527–1535, 2009.
- [97] M. Ilbas and S. Karyeyen. A numerical study on combustion behaviours of hydrogen-enriched low calorific value coal gases. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40:15218–15226, 2015.
- [98] H. G. Im and J. H. Chen. Effects of flow strain on triple flame propagation. *Combustion and Flame*, 126(1):1384–1392, 2001.
- [99] N. Jaouen. *An automated approach to derive and optimise reduced chemical mechanisms for turbulent combustion*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2017.
- [100] N. Jaouen, L. Vervisch, and P. Domingo. Auto-thermal reforming (ATR) of natural gas: An automated derivation of optimised reduced chemical schemes. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2016.
- [101] N. Jaouen, L. Vervisch, P. Domingo, and G. Ribert. Automatic reduction and optimisation of chemistry for turbulent combustion modelling: Impact of the canonical problem. *Combustion and Flame*, 2016.
- [102] T. Jaravel, E. Riber, B. Cuenot, and G. Bulat. Large Eddy Simulation of an industrial gas turbine combustor using reduced chemistry with accurate pollutant prediction. *Proceedings of the Combustion Institute*, 36(3):3817–3825, 2017.
- [103] S. Jerzembeck, N. Peters, P. Pepiot-Desjardins, and H. Pitsch. Laminar burning velocities at high pressure for primary reference fuels and gasoline: Experimental and numerical investigation. *Combustion and Flame*, 156(2):292–301, 2009.

- [104] W. P. Jones and R. P. Lindstedt. Global reaction schemes for hydrocarbon combustion. *Combustion and Flame*, 73(3):233–249, 1988.
- [105] R. J. Kee, F. M. Rupley, J. A. Miller, M. E. Coltrin, J. F. Grcar, E. Meeks, H. K. Moffat, A. E. Lutz, G. Dixon-Lewis, M. D. Smooke, J. Warnatz, G. H. Evans, R. S. Larson, R. E. Mitchell, L. R. Petzold, W. C. Reynolds, M. Caracotsios, W. E. Stewart, P. Glarborg, C. Wang, C. L. McLellan, O. Adigun, W. G. Houf, C. P. Chou, S. F. Miller, P. Ho, P. D. Young, D. J. Young, D. W. Hodgson, M. V. Petrova, and K. V. Pudukkham. *CHEMKIN release 4.1*. Reaction Design, San Diego, CA, 2006.
- [106] A. P. Kelley, W. Liu, Y. X. Xin, A. J. Smallbone, and C. K. Law. Laminar flame speeds, non-premixed stagnation ignition, and reduced mechanisms in the oxidation of iso-octane. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(1):501–508, 2011.
- [107] A. Ketelheun, G. Kuenne, and J. Janicka. Heat transfer modeling in the context of large eddy simulation of premixed combustion with tabulated chemistry. *Flow, Turbulence and Combustion*, 91(4):867–893, 2013.
- [108] M. K. Kim, S. H. Won, and S. H. Chung. Effect of velocity gradient on propagation speed of tribrachial flames in laminar coflow jets. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(1):901–908, 2007.
- [109] N. I. Kim, J. I. Seo, K. C. Oh, and H. D. Shin. Lift-off characteristics of triple flame with concentration gradient. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(1):367–374, 2005.
- [110] P. N. Kioni, K. N. C. Bray, D. A. Greenhalgh, and B. Rogg. Experimental and numerical studies of a triple flame. *Combustion and Flame*, 116(1):192–206, 1999.
- [111] O. M Knio, H. N. Najm, and P. S. Wyckoff. A semi-implicit numerical scheme for reacting flow: II. stiff, operator-split formulation. *Journal of Computational Physics*, 154(2):428–467, 1999.
- [112] V. Knop, A. Nicolle, and O. Colin. Modelling and speciation of nitrogen oxides in engines. *Proceedings of the Combustion Institute*, 34(1):667–675, 2013.
- [113] E. Knudsen and H. Pitsch. A general flamelet transformation useful for distinguishing between premixed and non-premixed modes of combustion. *Combustion and Flame*, 156(3):678–696, 2009.
- [114] P. D. Kourdis and J. Bellan. Heavy-alkane oxidation kinetic-mechanism reduction using dominant dynamic variables, self similarity and chemistry tabulation. *Combustion and Flame*, 161(5):1196–1223, 2014.
- [115] P. D. Kourdis and J. Bellan. High-pressure reduced-kinetics mechanism for n-hexadecane autoignition and oxidation at constant pressure. *Combustion and Flame*, 162(3):571–579, 2015.
- [116] Frank Kreith, editor. *The CRC handbook of thermal engineering*. CRC Press, 2000.
- [117] A. Krisman, E. R. Hawkes, M. Talei, A. Bhagatwala, and J. H. Chen. Polybrachial structures in dimethyl ether edge-flames at negative temperature coefficient conditions. *Proceedings of the Combustion Institute*, 35(1):999–1006, 2015.
- [118] G. Kuenne, A. Ketelheun, and J. Janicka. LES modeling of premixed combustion using a thickened flame approach coupled with FGM tabulated chemistry. *Combustion and Flame*, 158(9):1750–1767, 2011.
- [119] G. Kuenne, F. Seffrin, F. Fuest, T. Stahler, A. Ketelheun, D. Geyer, J. Janicka, and A. Dreizler. Experimental and numerical analysis of a lean premixed stratified burner using 1d raman/rayleigh scattering and large eddy simulation. *Combustion and Flame*, 159(8):2669–2689, 2012.

- [120] C. Lacour. *Stabilité des flammes laminaires partiellement prémélangées. Application aux brûleurs domestiques*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2006.
- [121] S. H. Lam and D. A. Goussis. Understanding complex chemical kinetics with computational singular perturbation. *Symposium (International) on Combustion*, 22(1):931–941, 1989.
- [122] J. Lamouroux, M. Ihme, B. Fiorina, and O. Gicquel. Tabulated chemistry approach for diluted combustion regimes with internal recirculation and heat losses. *Combustion and Flame*, 161(8):2120–2136, 2014.
- [123] C. K. Law. Combustion at a crossroads: status and prospects. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(1):1–29, 2007.
- [124] V. I. Lebedev. Explicit difference schemes with variable time steps for solving stiff systems of equations. In *International Workshop on Numerical Analysis and Its Applications*, pages 274–283. Springer, 1996.
- [125] B. J. Lee and S. H. Chung. Stabilization of lifted tribrachial flames in a laminar nonpremixed jet. *Combustion and Flame*, 109(1):163–172, 1997.
- [126] J. Lee, S. H. Won, S. H. Jin, and S. H. Chung. Lifted flames in laminar jets of propane in coflow air. *Combustion and Flame*, 135(4):449–462, 2003.
- [127] D. O. Lignell, J. H. Chen, P. J. Smith, T. Lu, and C. K. Law. The effect of flame structure on soot formation and transport in turbulent nonpremixed flames using direct numerical simulation. *Combustion and Flame*, 151(1):2–28, 2007.
- [128] F. A. Lindemann, S. Arrhenius, I. Langmuir, N. R. Dhar, J. Perrin, and W. M. Lewis. Discussion on “the radiation theory of chemical action”. *Transactions of the Faraday Society*, 17:598–606, 1922.
- [129] P. Lindstedt. Modeling of the chemical complexities of flames. *Symposium (International) on Combustion*, 27(1):269–285, 1998.
- [130] S. Liu, B. Renou, M. Sjöstrand, Y. D’Angelo, and F. Cozzi. Experimental study of combustion and flow dynamics in a meso-scale whirl combustor. *15th International Symposium on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics*, 2010.
- [131] C. Locci, O. Colin, D. Poitou, and F. Mauss. A tabulated, flamelet based NO model for large eddy simulations of non premixed turbulent jets with enthalpy loss. *Flow, Turbulence and Combustion*, 94(4):691–729, 2015.
- [132] G. Lodato, P. Domingo, and L. Vervisch. Three-dimensional boundary conditions for direct and large-eddy simulation of compressible viscous flows. *Journal of Computational Physics*, 227(10):5105–5143, 2008.
- [133] G. Lodier, L. Vervisch, V. Moureau, and P. Domingo. Composition-space premixed flamelet solution with differential diffusion for in situ flamelet-generated manifolds. *Combustion and Flame*, 158(10):2009–2016, 2011.
- [134] H. Lu and F. Porté-Agel. Large-eddy simulation of a very large wind farm in a stable atmospheric boundary layer. *Physics of Fluids*, 23(065101), 2011.
- [135] T. Lu and C. K. Law. Systematic approach to obtain analytic solutions of quasi steady state species in reduced mechanisms. *The Journal of Physical Chemistry A*, 110(49):13202–13208, 2006.
- [136] T. Lu and C. K. Law. A criterion based on computational singular perturbation for the identification of quasi steady state species: A reduced mechanism for methane oxidation with no chemistry. *Combustion and Flame*, 154(4):761–774, 2008.

- [137] T. Lu and C. K. Law. Strategies for mechanism reduction for large hydrocarbons: n-heptane. *Combustion and Flame*, 154(1):153–163, 2008.
- [138] T. Lu and C. K. Law. Toward accommodating realistic fuel chemistry in large-scale computations. *Progress in Energy and Combustion Science*, 35(2):192–215, 2009.
- [139] T. Lu, C. K. Law, C. S. Yoo, and J. H. Chen. Dynamic stiffness removal for direct numerical simulations. *Combustion and Flame*, 156(8):1542–1551, 2009.
- [140] J. Luche. *Obtention de modèles cinétiques réduits de combustion - Application à un mécanisme du kérosène*. PhD thesis, Université d’Orléans, 2003.
- [141] J. Luche, M. Reuillon, J.-C. Boettner, and M. Cathonnet. Reduction of large detailed kinetic mechanisms : application to kerosene/air combustion. *Combustion Science and Technology*, 176(11):1935–1963, 2004.
- [142] A. E. Lutz, F. M. Rupley, R. J. Kee, W. C. Reynolds, and E. Meeks. EQUIL: A CHEMKIN implementation of STANJAN for computing chemical equilibria. *Reaction Design Inc*, 1998.
- [143] U. Maas and S. B. Pope. Implementation of simplified chemical kinetics based on intrinsic low-dimensional manifolds. In Elsevier, editor, *Symposium (International) on Combustion*, volume 24, pages 103–112, 1992.
- [144] U. Maas and S. B. Pope. Simplifying chemical kinetics: intrinsic low-dimensional manifolds in composition space. *Combustion and Flame*, 88(3):239–264, 1992.
- [145] P. C. Malte and D. T. Pratt. The role of energy-releasing kinetics in NO_x formation: fuel-lean, jet-stirred CO-air combustion. *Combustion Science and Technology*, 9(5-6):221–231, 1974.
- [146] A. Massias, D. Diamantis, E. Mastorakos, and D. A. Goussis. An algorithm for the construction of global reduced mechanisms with CSP data. *Combustion and Flame*, 117(4):685–708, 1999.
- [147] M. Matalon. On flame stretch. *Combustion Science and Technology*, 31(3-4):169–181, 1983.
- [148] S. Mathur, P. K. Tondon, and S. C. Saxena. Thermal conductivity of binary, ternary and quaternary mixtures of rare gases. *Molecular physics*, 12(6):569–579, 1967.
- [149] M. J. McNenly, R. A. Whitesides, and D. L. Flowers. Faster solvers for large kinetic mechanisms using adaptive preconditioners. *Proceedings of the Combustion Institute*, 35(1):581–587, 2015.
- [150] A. A. Medovikov. High order explicit methods for parabolic equations. *BIT Numerical Mathematics*, 38(2):372–390, 1998.
- [151] J.-B. Michel, O. Colin, and D. Veynante. Modeling ignition and chemical structure of partially premixed turbulent flames using tabulated chemistry. *Combustion and Flame*, 152(1):80–99, 2008.
- [152] J. A. Miller and C. T. Bowman. Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 15(4):287–338, 1989.
- [153] V. Moureau, P. Domingo, and L. Vervisch. From large-eddy simulation to direct numerical simulation of a lean premixed swirl flame: Filtered laminar flame-pdf modeling. *Combustion and Flame*, 158(7):1340–1357, 2011.
- [154] J.-M. Muller. *Elementary functions: Algorithms and Implementation*. Birkhäuser, 2nd edition, 2005.
- [155] H. N. Najm, P. S. Wyckoff, and O. M Knio. A semi-implicit numerical scheme for reacting flow: I. stiff chemistry. *Journal of Computational Physics*, 143(2):381–402, 1998.
- [156] S. K. Nambully. *A Filtered-Laminar-Flame PDF subgrid scale closure for LES of Premixed Turbulent Flames: Application to a Stratified Bluff-body burner with Differential Diffusion*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2013.

- [157] C. L. M. H. Navier. Mémoire sur les lois du mouvement des fluides. *Mémoires de l'Académie Royale des Sciences de l'Institut de France*, 6:389–440, 1823.
- [158] P.-D. Nguyen, L. Vervisch, V. Subramanian, and P. Domingo. Multidimensional flamelet-generated manifolds for partially premixed combustion. *Combustion and Flame*, 157(1):43–61, 2010.
- [159] Y.-S. Niu, L. Vervisch, and P. D. Tao. An optimization-based approach to detailed chemistry tabulation: Automated progress variable definition. *Combustion and Flame*, 160(4):776–785, 2013.
- [160] O. O. Oluwole, B. Bhattacharjee, J. E. Tolsma, P. I. Barton, and W. H. Green. Rigorous valid ranges for optimally reduced kinetic models. *Combustion and Flame*, 146(1):348–365, 2006.
- [161] F. Pecquery, V. Moureau, G. Lartigue, L. Vervisch, and A. Roux. Modelling nitrogen oxide emissions in turbulent flames with air dilution: Application to LES of a non-premixed jet-flame. *Combustion and Flame*, 161(2):496–509, 2014.
- [162] D. Y. Peng and D. B. Robinson. A new two-constant equation of state. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 15(1):59–64, 1976.
- [163] P. Pepiot-Desjardins and H. Pitsch. An automatic chemical lumping method for the reduction of large chemical kinetic mechanisms. *Combustion Theory and Modelling*, 12(6):1089–1108, 2008.
- [164] P. Pepiot-Desjardins and H. Pitsch. An efficient error-propagation-based reduction method for large chemical kinetic mechanisms. *Combustion and Flame*, 154(1):67–81, 2008.
- [165] F. Perini, E. Galligani, and R. D. Reitz. An analytical jacobian approach to sparse reaction kinetics for computationally efficient combustion modeling with large reaction mechanisms. *Energy and Fuels*, 26(8):4804–4822, 2012.
- [166] F. Perini, E. Galligani, and R. D. Reitz. A study of direct and Krylov iterative sparse solver techniques to approach linear scaling of the integration of chemical kinetics with detailed combustion mechanisms. *Combustion and Flame*, 161(5):1180–1195, 2014.
- [167] N. Peters. Numerical and asymptotic analysis of systematically reduced reaction schemes for hydrocarbon flames. In *Numerical simulation of combustion phenomena*. Springer Berlin Heidelberg, 1985.
- [168] N. Peters. *Turbulent combustion*. Cambridge university press, 2000.
- [169] N. Peters and R. J. Kee. The computation of stretched laminar methane-air diffusion flames using a reduced four-step mechanism. *Combustion and Flame*, 68(1):17–29, 1987.
- [170] X. Petit, G. Ribert, and P. Domingo. Framework for real-gas compressible reacting flows with tabulated thermochemistry. *The Journal of Supercritical Fluids*, 101:1–16, 2015.
- [171] H. Phillips. Flame in a buoyant methane layer. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 10, pages 1277–1283. Elsevier, 1965.
- [172] C. D. Pierce and P. Moin. Progress-variable approach for large-eddy simulation of non-premixed turbulent combustion. *Journal of Fluid Mechanics*, 504:73–97, 2004.
- [173] T. Plessing, P. Terhoeven, N. Peters, and M. S. Mansour. An experimental and numerical study of a laminar triple flame. *Combustion and Flame*, 115(3):335–353, 1998.
- [174] T. Poinso and S. K. Lele. Boundary conditions for direct simulations of compressible viscous flows. *Journal of Computational Physics*, 101(1):104–129, 1992.
- [175] T. Poinso and D. Veynante. *Theoretical and numerical combustion*. RT Edwards, Inc., 2005.

- [176] W. Polifke, W. Geng, and K. Döbbeling. Optimization of rate coefficients for simplified reaction mechanisms with genetic algorithms. *Combustion and Flame*, 113(1):119–134, 1998.
- [177] S. B. Pope. Computationally efficient implementation of combustion chemistry using in situ adaptive tabulation. *Combustion Theory and Modelling*, 1(1):41–63, 1997.
- [178] J. Prager, H. N. Najm, M. Valorani, and D. A. Goussis. Structure of n-heptane/air triple flames in partially-premixed mixing layers. *Combustion and Flame*, 158(11):2128–2144, 2011.
- [179] F. Proch and A. Kempf. Numerical analysis of the Cambridge stratified flame series using artificial thickened flame LES with tabulated premixed flame chemistry. *Combustion and Flame*, 161(10):2627–2646, 2014.
- [180] X. Qin, C. W. Choi, A. Mukhopadhyay, I. K. Puri, S. K. Aggarwal, and V. R. Katta. Triple flame propagation and stabilization in a laminar axisymmetric jet. *Combustion Theory and Modelling*, 8(2):293–314, 2004.
- [181] Z. Ren and S. B. Pope. The use of slow manifolds in reactive flows. *Combustion and Flame*, 147(4):243–261, 2006.
- [182] Z. Ren, S. B. Pope, A. Vladimirovsky, and J. M. Guckenheimer. The invariant constrained equilibrium edge preimage curve method for the dimension reduction of chemical kinetics. *The Journal of Chemical Physics*, 124(11):114111, 2006.
- [183] Z. Ren, S. B. Pope, A. Vladimirovsky, and J. M. Guckenheimer. Application of the ICE-PIC method for the dimension reduction of chemical kinetics coupled with transport. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(1):473–481, 2007.
- [184] W. C. Reynolds. The element potential method for chemical equilibrium analysis: Implementation in the interactive program STANJAN, version 3. Technical report, Dept. of Mechanical Engineering, Stanford Univ., Stanford, 1986.
- [185] G. Ribert, M. Champion, O. Gicquel, N. Darabiha, and D. Veynante. Modeling nonadiabatic turbulent premixed reactive flows including tabulated chemistry. *Combustion and Flame*, 141(3):271–280, 2005.
- [186] G. Ribert, O. Gicquel, N. Darabiha, and D. Veynante. Tabulation of complex chemistry based on self-similar behavior of laminar premixed flames. *Combustion and Flame*, 146(4):649–664, 2006.
- [187] G. Ribert, X. Petit, and P. Domingo. High-pressure methane-oxygen flames. analysis of sub-grid scale contributions in filtered equations of state. *The Journal of Supercritical Fluids*, 121:78–88, 2017.
- [188] G. Ribert, L. Vervisch, P. Domingo, and Y.-S. Niu. Hybrid transported-tabulated strategy to downsize chemistry for numerical simulation of premixed flames. *Flow, Turbulence and Combustion*, 92:175–200, 2014.
- [189] G. Ribert, K. Wang, and L. Vervisch. A multi-zone self-similar chemistry tabulation with application to auto-ignition including cool-flames effects. *Fuel*, 91(1):87–92, 2012.
- [190] R. J. Roby and C. T. Bowman. Formation of N₂O in laminar, premixed, fuel-rich flames. *Combustion and Flame*, 70(1):119–123, 1987.
- [191] D. L. Ropp, J. N. Shadid, and C. C. Ober. Studies of the accuracy of time integration methods for reaction–diffusion equations. *Journal of Computational Physics*, 194(2):544–574, 2004.
- [192] G. R. Ruetsch, L. Vervisch, and A. Liñán. Effects of heat release on triple flames. *Physics of Fluids*, 7(6):1447–1454, 1995.

- [193] Sandia Laboratory. Properties of some fuels. <http://www.sandia.gov/ecn/cvdata/sandiaCV/fuels.php>, 2016.
- [194] S. M. Sarathy, C. K. Westbrook, M. Mehl, W. J. Pitz, C. Togbe, P. Dagaut, H. Wang, M. A. Oehlschlaeger, U. Niemann, K. Seshadri, P. S. Veloo, C. Ji, F. N. Egolfopoulos, and T. Lu. Comprehensive chemical kinetic modeling of the oxidation of 2-methylalkanes from C7 to C20. *Combustion and Flame*, 158(12):2338–2357, 2011.
- [195] B. Savard, Y. Xuan, B. Bobbitt, and G. Blanquart. A computationally-efficient, semi-implicit, iterative method for the time-integration of reacting flows with stiff chemistry. *Journal of Computational Physics*, 295:740–769, 2015.
- [196] O. Schulz, T. Jaravel, T. Poinot, B. Cuenot, and N. Noiray. A criterion to distinguish autoignition and propagation applied to a lifted methane–air jet flame. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2016.
- [197] D. A. Schwer, P. Lu, W. H. Green, and V. Semiao. A consistent-splitting approach to computing stiff steady-state reacting flows with adaptive chemistry. *Combustion Theory and Modelling*, 7(2):383–399, 2003.
- [198] D. A. Schwer, J. E. Tolsma, W. H. Green, and P. I. Barton. On upgrading the numerics in combustion chemistry codes. *Combustion and Flame*, 128(3):270–291, 2002.
- [199] J. I. Seo, N. I. Kim, and H. D. Shin. An experimental study of the fuel dilution effect on the propagation of methane–air tribrachial flames. *Combustion and Flame*, 153(3):355–366, 2008.
- [200] K. Seshadri and N. Peters. Asymptotic structure and extinction of methane-air diffusion flames. *Combustion and Flame*, 73(1):23–44, 1988.
- [201] C. W. Shu and S. Osher. Efficient implementation of essentially non-oscillatory shock-capturing schemes. *Journal of Computational Physics*, 77(2):439–471, 1988.
- [202] N. Sikalo, O. Hasemann, C. Schulz, A. Kempf, and I. Wloka. A genetic algorithm–based method for the optimization of reduced kinetics mechanisms. *International Journal of Chemical Kinetics*, 47(11):695–723, 2015.
- [203] M. A. Singer, S. B. Pope, and H. N. Najm. Modeling unsteady reacting flow with operator splitting and ISAT. *Combustion and Flame*, 147(1):150–162, 2006.
- [204] J. P. Slotnick, A. Khodadoust, J. J. Alonso, D. L. Darmofal, W. D. Gropp, E. A. Lurie, D. J. Mavriplis, and V. Venkatakrishnan. Enabling the environmentally clean air transportation of the future: a vision of computational fluid dynamics in 2030. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A*, 372(2022), 2014.
- [205] G. P. Smith, D. M. Golden, M. Frenklach, N. W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldenberg, C. T. Bowman, R. K. Hanson, S. Song, W. C. Jr. Gardiner, V. V. Lissianski, and Z. Qin. GRI 3.0 mechanism. <http://combustion.berkeley.edu/gri-mech/>.
- [206] G. Soave. Equilibrium constants from a modified Redlich-Kwong equation of state. *Chemical Engineering Science*, 27(6):1197–1203, 1972.
- [207] R. L. Speth, W. H. Green, S. MacNamara, and G. Strang. Balanced splitting and rebalanced splitting. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 51(6):3084–3105, 2013.
- [208] B. Sportisse. An analysis of operator splitting techniques in the stiff case. *Journal of Computational Physics*, 161(1):140–168, 2000.
- [209] P. H. Stewart, C. W. Larson, and D. M. Golden. Pressure and temperature dependence of reactions proceeding via a bound complex. 2. application to $2\text{CH}_3 \rightarrow \text{C}_2\text{H}_5 + \text{H}$. *Combustion and Flame*, 75(1):25–31, 1989.

- [210] G. G. Stokes. On the theories of the internal friction of fluids in motion. *Transactions of the Cambridge Philosophical Society*, 8:287–305, 1845.
- [211] G. Strang. On the construction and comparison of difference schemes. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 5(3):506–517, 1968.
- [212] W. Sutherland. The viscosity of gases and molecular force. *Philosophical Magazine*, 36(223):507–531, 1893.
- [213] A. S. Tomlin, M. J. Pilling, J. H. Merkin, J. Brindley, N. Burgess, and A. Gough. Reduced mechanisms for propane pyrolysis. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 34(11):3749–3760, 1995.
- [214] A. S. Tomlin, M. J. Pilling, T. Turanyi, J. H. Merkin, and J. Brindley. Mechanism reduction for the oscillatory oxidation of hydrogen: sensitivity and quasi-steady-state analyses. *Combustion and Flame*, 91(2):107–130, 1992.
- [215] S. R. Tonse, N. W. Moriarty, N. J. Brown, and M. Frenklach. PRISM: Piecewise reusable implementation of solution mapping. an economical strategy for chemical kinetics. *Israel Journal of Chemistry*, 39(1):97–106, 1999.
- [216] L. K. Tseng, M. A. Ismail, and G. M. Faeth. Laminar burning velocities and markstein numbers of hydrocarbonair flames. *Combustion and Flame*, 95(4):410–426, 1993.
- [217] United States Department of Energy. Lower and higher heating values of hydrogen and other fuels. <http://hydrogen.pnl.gov/hydrogen-data/lower-and-higher-heating-values-hydrogen-and-other-fuels>, 2016.
- [218] United States Environmental Protection Agency. Overview of greenhouse gases. <http://www3.epa.gov/climatechange/ghgemissions/gases.html>, 2016.
- [219] M. Valorani, F. Creta, D. A. Goussis, J. C. Lee, and H. N. Najm. An automatic procedure for the simplification of chemical kinetic mechanisms based on CSP. *Combustion and Flame*, 146(1):29–51, 2006.
- [220] M. Valorani and D. A. Goussis. Explicit time-scale splitting algorithm for stiff problems: auto-ignition of gaseous mixtures behind a steady shock. *Journal of Computational Physics*, 169(1):44–79, 2001.
- [221] J. A. Van Oijen and L. P. H. De Goey. Modelling of premixed laminar flames using flamelet-generated manifolds. *Combustion Science and Technology*, 161(1):113–137, 2000.
- [222] J. A. Van Oijen and L. P. H. De Goey. A numerical study of confined triple flames using a flamelet-generated manifold. *Combustion Theory and Modelling*, 8(1):141–164, 2004.
- [223] J. A. Van Oijen, F. A. Lammers, and L. P. H. De Goey. Modeling of complex premixed burner systems by using flamelet-generated manifolds. *Combustion and Flame*, 127(3):2124–2134, 2001.
- [224] L. M. Verhoeven, W. J. S. Ramaekers, J. A. Van Oijen, and L. P. H. De Goey. Modeling non-premixed laminar co-flow flames using flamelet-generated manifolds. *Combustion and Flame*, 159(1):230–241, 2012.
- [225] L. Vervisch, R. Hauguel, P. Domingo, and M. Rullaud. Three facets of turbulent combustion modelling: DNS of premixed V-flame, LES of lifted nonpremixed flame and RANS of jet-flame. *Journal of Turbulence*, 5(4):1–8, 2004.
- [226] P. E. Vervisch, O. Colin, J.-B. Michel, and N. Darabiha. NO relaxation approach (NORA) to predict thermal NO in combustion chambers. *Combustion and Flame*, 158(8):1480–1490, 2011.
- [227] J. G. Verwer. Explicit Runge-Kutta methods for parabolic partial differential equations. *Applied Numerical Mathematics*, 22(1):359–379, 1996.

- [228] D. Veynante, B. Fiorina, P. Domingo, and L. Vervisch. Using self-similar properties of turbulent premixed flames to downsize chemical tables in high-performance numerical simulations. *Combustion Theory and Modelling*, 12(6):1055–1088, 2008.
- [229] R. Vicquelin. Coupling tabulated chemistry with compressible CFD solvers. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(1):1481–1488, 2011.
- [230] A. W. Vreman, B. A. Albrecht, J. A. Van Oijen, L. P. H. De Goey, and R. J. M. Bastiaans. Premixed and nonpremixed generated manifolds in large-eddy simulation of Sandia flame D and F. *Combustion and Flame*, 153(3):394–416, 2008.
- [231] K. Wang, G. Ribert, P. Domingo, and L. Vervisch. Self-similar behavior and chemistry tabulation of burnt-gas diluted premixed flamelets including heat-loss. *Combustion Theory and Modelling*, 14(4):541–570, 2010.
- [232] K. A. Watson, K. M. Lyons, J. M. Donbar, and C. D. Carter. Scalar and velocity field measurements in a lifted CH₄–air diffusion flame. *Combustion and Flame*, 117(1):257–271, 1999.
- [233] C. K. Westbrook and F. L. Dryer. Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames. *Combustion Science and Technology*, 27(1-2):31–43, 1981.
- [234] C. R. Wilke. A viscosity equation for gas mixtures. *The Journal of Chemical Physics*, 18(4), 1950.
- [235] F. A. Williams. *Combustion Theory*. Benjamin Cummings, Menlo Park, CA, 1985.
- [236] F. A. Williams. Progress in knowledge of flamelet structure and extinction. *Progress in Energy and Combustion Science*, 26(4):657–682, 2000.
- [237] J. Wolfrum. Bildung von stickstoffoxiden bei der verbrennung. *Chemie Ingenieur Technik*, 44(10):656–659, 1972.
- [238] C. Y. Wu and K. H. Chen. Characterization of hydrogen triple flame propagation in vitiated laminar coaxial flow. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(26):14109–14119, 2014.
- [239] K. Yamamoto, Y. Isobe, N. Hayashi, H. Yamashita, and S. H. Chung. Behaviors of tribrachial edge flames and their interactions in a triple-port burner. *Combustion and Flame*, 162(5):1653–1659, 2015.
- [240] H. Yamashita, M. Shimada, and T. Takeno. A numerical study on flame stability at the transition point of jet diffusion flames. *Symposium (International) on Combustion*, 26(1):27–34, 1996.
- [241] A. C. Zambon and H. K. Chelliah. Explicit reduced reaction models for ignition, flame propagation, and extinction of C₂H₄/CH₄/H₂ and air systems. *Combustion and Flame*, 150(1):71–91, 2007.
- [242] Y. B. Zel'Dovich. The oxidation of nitrogen in combustion and explosions. *Acta Physicochim.*, 21(4):577–628, 1946.
- [243] X. Zhong. Additive semi-implicit Runge–Kutta methods for computing high-speed nonequilibrium reactive flows. *Journal of Computational Physics*, 128(1):19–31, 1996.