

REPUBLIQUE DU CAMEROUN
Paix-Travail-Patrie

UNIVERSITE DE YAOUNDE I

CENTRE DE RECHERCHE ET DE
FORMATION DOCTORALE EN SCIENCES,
TECHNOLOGIES ET GEOSCIENCES

UNITE DE RECHERCHE ET DE
FORMATION DOCTORALE EN
PHYSIQUES ET APPLICATIONS

B.P 812 Yaoundé
Email: crfd_stg@uy1.uninet.cm



REPUBLIC OF CAMEROON
Peace-Work-Fatherland

THE UNIVERSITY OF YAOUNDE I

POSTGRADUATE SCHOOL OF
SCIENCES, TECHNOLOGY AND
GEOSCIENCES

RESEARCH AND POSTGRADUATE
TRAINING UNIT FOR PHYSICS
AND APPLICATIONS

P.O. Box 812 Yaoundé
Email: crfd_stg@uy1.uninet.cm

Laboratoire d'Energie et des Systèmes Électriques et Électroniques
Option : *Energie et Environnement*

« Ecriture et validation d'une méthode de réduction de la cinétique chimique de type Computational Singular Perturbation : Application à la combustion numérique du biogaz ».

THESE

Présentée en vue de l'obtention du diplôme de Doctorat/Ph.D de Physique

Par

AWAKEM David Martial

Matricule : 12W1935

Master of Science en Physique



Soutenue publiquement le 28/08/2020 devant un jury composé de :

- Président :** NDJAKA Jean-Marie Bienvenu, Professeur, Université de Yaoundé I ;
- Rapporteur :** EKOBEA FOU DA Henri Paul, Professeur, Université de Yaoundé I ;
OBOUNOU AKONG Marcel Brice, Chargé de Cours, Université Yaoundé I ;
- Membres :** NJANDJOCK NOUCK Philippe, Professeur, Université de Yaoundé I ;
VONDOU DERBETINI Apollinaire, Maître de Conférences, Université de Yaoundé I ;
TAMBA Jean Gaston, Maître de Conférences, Université de Douala.



DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
DEPARTMENT OF PHYSICS

ATTESTATION DE CORRECTION DE LA THESE DE DOCTORAT/Ph.D

Nous, Professeur NJANDJOCK NOUCK Philippe et Professeur VONDOU DERBETINI Appolinaire, Examineurs, et Professeur NDJAKA Jean-Marie Bienvenu, Président du Jury de la Thèse de Doctorat/Ph.D de Monsieur AWAKEM David Martial, Matricule 12W1935, préparée sous la direction du Docteur OBOUNOU AKONG Marcel Brice et sous la supervision du Professeur EKOBENA FOUDA Henri Paul, intitulée : « **Ecriture et validation d'une méthode de réduction de la cinétique chimique de type Computational Singular Perturbation : Application à la combustion numérique du biogaz** », soutenue le **Vendredi, 28 Août 2020**, en vue de l'obtention du grade de Docteur/PhD en Physique, Spécialité **Laboratoire d'Energie et des Systèmes Électriques et Électroniques**, attestons que toutes les corrections demandées par le Jury de soutenance ont été effectuées.

En foi de quoi, la présente attestation lui est délivrée pour servir et valoir ce que de droit.

Fait à Yaoundé le **18 4 SEP 2020**

L'Examineurs

Le Président du Jury

Pr. VONDOU DERBETINI
Appolinaire

Pr. NJANDJOCK NOUCK
Philippe

Pr. NDJAKA Jean-
Marie Bienvenu



Le Chef de Département de Physique

Dédicace

Je dédie cette thèse à

mon feu père M. **MECHOP** Jean Raphael.

Remerciements

Cette thèse qui vient sanctionner mon cursus universitaire, est l'aboutissement de quatre années de dur labeur, depuis 2016. Quatre années difficiles, mais très souvent captivantes au cours desquelles une des satisfactions personnelles, au-delà de celle que me procure cette thèse est d'avoir apporté à la suite d'autres chercheurs, ma modeste contribution à l'avancement en énergie et en particulier la combustion ; ce qui dans le futur, pourrait inspirer d'autres travaux de recherche.

Tout d'abord, je tiens à exprimer ma vive et profonde gratitude à mes superviseurs de thèse, Dr. OBOUNOU AKONG Marcel et Professeur EKOBENA FOU DA Henri Paul, qui ont su me frayer ce chemin et m'orienter dans cet axe de recherche. Je leur suis infiniment reconnaissant pour tous leurs soutiens, et la confiance qu'ils m'ont témoigné en acceptant de diriger mes travaux.

Un spécial remerciement à Dr. OBOUNOU AKONG Marcel de m'avoir accepté au Groupement Camerounais de Combustion (GCC). Je n'oublierai pas son savoir-faire et ses méthodes de travail très académiques qu'il m'a soigneusement inculqué.

Un remerciement au staff académique et administratif de l'université de Yaoundé 1, en particulier ceux du département de Physique.

Je remercie le professeur NDJAKA Jean-Marie Bienvenu, Chef de Département de Physique à l'université de Yaoundé 1 pour sa contribution administrative et surtout ses conseils.

Mes remerciements s'adressent également au coordonnateur du laboratoire LATEE de l'université de Yaoundé 1, au Professeur NJOMO Donatien de m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour tous ces conseils et enseignements prodigés.

Je remercie le Professeur NJANDJOCK NOUCK Philippe, pour ses multiples conseils pratiques.

Je remercie le Professeur VONDOU Derbetini Appolinaire, pour ses multiples encouragements, conseils et aides.

J'exprime ensuite ma reconnaissance au Professeur NDJAKA Jean-Marie Bienvenu

de m'avoir fait un grand honneur en acceptant de présider à mon jury de Thèse.

Mes remerciements vont aussi à l'endroit des Professeurs TAMBA Jean Gaston, NJANDJOCK NOUCK Philippe et VONDOU DERBETINI Apollinaire qui ont bien voulu accepter de relire mon manuscrit et de prendre part à ce jury. Je leur dis sincèrement merci pour cette importante contribution.

A vous mes aînés et cadets académiques, j'adresse mes remerciements en guise de sympathie et la collaboration dont vous avez fait preuve. A l'instar de Dr. FOTSING TALLA Cyrille, Dr. MBOUMBOUE Edouard, Dr. WATI Elvis, Dr. TALLA KONCHOU Franck Armel, Dr. DELI GORON, Dr. MBIEDA Duplex, M. NZADI SIEWE Eli, M. Mahamat Hassane Babikir, M. Téfouet Martial etc.

Un remerciement à tous les membres du Groupement Camerounais de Combustion (GCC), ainsi le Professeur MOUANGUE Ruben, Dr. AYISSI Merlin, Dr. BOMBA Valentin, Dr. CHELEM, M. NGNINTEDEM Cyrille, M. NOUME CHOPKAP Hermann, M. LONTSI Stéfan, M. Jean Paul GRAM SHOU, M. CHAMGA Armand, M. KAMTA Roméo, M. BISSAI Junior etc.

Un remerciement à tous mes amis, qui ont contribué de près où de loin : Dr. WOUAPI KEMAYOU Marcel, Dr. MEZATIO Anicet, M. FEZE NGOMSI Romuald, M. DJAZET Alain, M. MELOU Hippolyte, M. ATIOMENA LEMOFOUET Romain, M. MOUAFO WAKEM Alain Joel, M. BIAMO Junior, Mlle ATANGANA Julia, etc.

Je ne saurais jamais assez dire merci à mes frères et sœurs pour leur soutien inconditionnel et leurs encouragements tout au long de mon cursus. Il s'agit de : Professeur KANA Jean Raphaël, M. WAMBA KOUDJOU Simplicie, M. MBOBA Serges Ledoux, M. NANGMO Ghislain, M. TAZOHO Armand, Mlle MEGOU Florine , Mlle KEUMO Gladys Laure etc.

Mes dernières pensées, mais alors les plus profondes vont à l'entroit de mes tendres parents, feu Papa MECHOP Jean Raphaël et ma chère maman DONGHO Emilienne dit "mama Docteur", pour l'éducation qu'ils m'ont donné, l'amour qu'ils m'ont témoigné et les recadrages qui se sont révélés nécessaires. Vous m'avez appris l'importance de la famille, la force dans l'adversité, l'importance de l'amour la patience et le plaisir

de la charité. Vous avez été les plus grands des professeurs.

A tous ceux que je ne peux citer ici tant ils sont nombreux à avoir une place dans mon cœur : amis, collaborateurs, collègues, Cousins, neveux, frère etc. A tous ceux qui, de près ou de loin et de quelque manière que ce soit ont contribué à l'aboutissement de ce travail, je leur suis infiniment reconnaissant pour leurs multiples contributions qu'ils m'ont régulièrement apportées durant mes travaux et tout particulièrement dans la réalisation de cette étude.

Table des matières

Dédicace	i
Remerciements	ii
Table of contents	v
List of Figures	vii
List of Tables	viii
Résumé	ix
Abstract	xi
symboles	xiii
Abréviation	xiii
Introduction générale	1
1 Généralités sur le biogaz, la combustion et les méthodes de réduction de la cinétique chimique.	7
1.1 Introduction	7
1.2 L'augmentation de la consommation d'énergie	8

1.2.1	Les nouvelles énergies.	10
1.2.2	L'énergie au Cameroun et la part du biogaz.	11
1.3	Modélisation de la combustion numérique.	18
1.3.1	Le rôle de la cinétique chimique complexe dans la combustion.	19
1.3.2	Importance des mécanismes détaillés.	20
1.4	Méthodes de réduction de mécanismes de cinétiques chimiques.	21
1.4.1	Calcul des flux atomiques et analyse des chemins réactionnels	21
1.4.2	L'analyse de sensibilité	23
1.4.3	La méthode du Repro-Modelling	24
1.4.4	La méthode "Intrinsic Low-Dimensional Manifold" ILDM.	26
1.4.5	Le méthode « Rate-Controlled constrained-Equilibrium » (RCCE).	27
1.4.6	Approximation de l'Etat Quasi-Stationnaire : AEQS.	28
1.4.7	Approximation de l'Equilibre Partiel : AEP	29
1.4.8	La méthode de sélection liée aux temps caractéristiques des espèces.	30
1.4.9	La méthode CSP (Computational Singular Perturbation)	30
1.5	Conclusion partielle.	32
2	Les outils théoriques et numériques pour la combustion du biogaz à l'aide d'une réduction de la cinétique chimique de type "Computa- tional Singular Perturbation".	34
2.1	Introduction	34
2.2	La théorie de la réduction de la cinétique chimique de type "Computa- tional Singular Perturbation".	35
2.2.1	Généralités sur le mécanisme réactionnel	35
2.2.2	Fichier de données thermodynamiques : Therm.dat	36

2.2.3	L'interpréteur chimique : CKINTERP.F	38
2.2.4	Le réacteur parfaitement agité : Perfectly Stirred Reactor (PSR)	39
2.2.5	Outils mathématiques de la méthode "Computational Singular Perturbation".	44
2.2.6	Fondement de la méthode	44
2.2.7	Vecteurs de base	45
2.2.8	Bases idéales	46
2.2.9	Classification des groupes	47
2.2.10	Matrice de projection	48
2.2.11	Radical- CSP	48
2.2.12	Identification des radicaux-CSP et des réactions rapides	51
2.2.13	Modèle simplifié	52
2.2.14	Indice d'importance	52
2.2.15	Indice de participation	53
2.2.16	Système minimum	53
2.3	La modélisation numérique de la combustion turbulente	55
2.3.1	Les équations moyennées de Favre	55
2.3.2	Modèle de turbulence	57
2.3.3	Modèles de combustion turbulents	57
2.3.4	Modèle Intermittent Lagrangien (MIL)	58
2.3.5	Présentation du modèle réacteur partiellement agité (PaSR) . .	61
2.3.6	Simulation numérique (CFD OpenFoam)	62
2.4	Description et simulation de la géométrie	67
2.5	Conclusion partielle	69

3 Résultats et discussions	70
3.1 Introduction	70
3.2 Intégration de la méthode "Computational Singular Perturbation". . .	71
3.3 Simulations numériques	74
3.3.1 Simulation de la flamme de diffusion turbulente CH ₄ /H ₂ /N ₂ de type "DLR-flame A"	75
3.3.2 Validation de la table de délais d'ignition du mécanisme réduit par la méthode CSP avec le modèle PSR.	81
3.3.3 Simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente de type " DRL-Flame A" avec le modèle MIL.	82
3.3.4 Etude comparative des modèles de combustion PaSR et MIL. . .	86
3.4 Résultats de la combustion numérique du biogaz produit à partir de plusieurs sources.	90
3.5 Etudes numériques sur les effets de l'enrichissement du biogaz par le d'hydrogène.	101
3.6 Conclusion partielle	110
Conclusion générale et perspectives	112
Bibliographie	116
Liste des publications	127

Table des figures

1.1	Evolution de la production d'énergie primaire (en millions de tep) par source. Source : Key World Energy Statistics, IEA – 2017	9
1.2	Différentes sources d'énergies renouvelables : photovoltaïque (Solaire) (a) , éolien (b), biomasse (c) et ordures ménagères (d). Source : Google map.	10
1.3	Images des barrages hydroélectricité de Lom pangar (a) et Nachtigal (b) au Cameroun. Source : Google map.	10
1.4	Répartition des sources d'émission de méthane (rejets atmosphériques) d'origine naturelle et anthropique dans le monde [52]	11
1.5	Quelques images des agents de la société Hygiène et salubrité du Cameroun (Hysacam) en activités.	13
1.6	Déchets organique, source de nuisances pour l'homme et son environnement.	14
1.7	Quelques substrats permettant de réaliser une digestion anaérobie : fosse septique (a), bouse de vache (b), matière organique (c) et ordures ménagères (d). Source : Google map.	15
1.8	Schéma de synthèse d'un diagramme de flux atomiques entre les espèces k et k' [29]	22
2.1	Interpréteur chimique [87].	38

2.2	Représentation schématique du réacteur PSR [87]	39
2.3	Fonctionnement de PSR au sein de CHEMKIN-II [87]	40
2.4	Présentation du modèle MIL	59
2.5	Présentation du modèle PaSR	61
2.6	Aperçu de la structure OpenFoam	64
2.7	schéma des répertoires principaux (0, constant, system) [108].	65
2.8	Configuration de la flamme de diffusion de type “ DLR Flame A ”, composition fuel : CH ₄ = 22.1%, H ₂ = 33.2% et N ₂ = 44.7%.	68
3.1	Nombre de radicaux-CSP pour différentes valeurs de Yerror.	71
3.2	Evolution de la température et des fractions massiques des espèces ma- joritaires (CH ₄ et H ₂)	72
3.3	Evolution des fractions massiques des espèces majoritaires O ₂ , H ₂ O et CO ₂	73
3.4	Profil radial de la température à des positions x/D = 5, 10 et 20. Expé- rimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), méca- nisme détaillé (FUL, couleur bleu).	76
3.5	Profil radial de la fraction massique moyenne de CH ₄ à des positions x/D = 5, 10 et 20. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).	76
3.6	Profil radial de la fraction massique moyenne de O ₂ à des positions x/D = 5, 10 et 20. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).	77
3.7	Profil radial de la fraction massique moyenne de H ₂ à des positions x/D = 5, 10 et 20. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).	77
3.8	Profil radial de la fraction massique moyenne de CO ₂ à des positions x/D = 5, 10 et 20. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).	78

3.9	Profil radial de la fraction massique moyenne de H ₂ O à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).	78
3.10	Profil axial de la température et des fractions massiques moyennes des espèces CH ₄ , O ₂ . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FULL, couleur bleu).	79
3.11	Profil axial des fractions massiques moyennes des espèces H ₂ , CO ₂ et H ₂ O. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FULL, couleur bleu).	79
3.12	évolution des délais d'ignitions; (a) ($\tilde{\phi} = 0.04222, \tilde{Y}_{O_2} = 0.150$); (b) ($\tilde{\phi} = 0.01, \tilde{Y}_{O_2} = 0.05$); (C) ($\tilde{\phi} = 0.3, \tilde{Y}_{O_2} = 0.05$); mécanisme (CSP, ligne, violet), Yang et al (Pope, ligne points, bleu), mécanisme (GRI 3.0, carré points ligne, rouge).	81
3.13	Profil radial de la température (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne), (Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)	83
3.14	profil radial de la fraction massique de CH ₄ (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)	83
3.15	profil radial de la fraction massique de H ₂ (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)	84
3.16	profil radial de la fraction massique de O ₂ (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)	84

3.17	profil radial de la fraction massique de H2O (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)	85
3.18	profil radial de la fraction massique de CO2 (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)	85
3.19	profil radial de la température (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)	87
3.20	profil radial de la fraction massique de CH4 (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)	87
3.21	profil radial de la fraction massique de H2 (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)	88
3.22	profil radial de la fraction massique de O2 (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)	88
3.23	profil radial de la fraction massique de H2O (CSP-PaSR = mécanisme réduit, line), (CSP-MIL= mécanisme réduit, carré), (Exp = données expérimentales, pointillés)	89
3.24	profil radial de la fraction massique de CO2 (CSP-PaSR = mécanisme réduit, line), (CSP-MIL= mécanisme réduit, carré), (Exp = données expérimentales, pointillés)	89
3.25	Contour de la température des différents bioagaz	91

3.26	Profil radial de la température du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	91
3.27	Profil radial de la fraction massique de CH ₄ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	92
3.28	Profil radial de la fraction massique de H ₂ du biogaz produit à partir des différentes sources Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	93
3.29	Profil radial de la fraction massique de O ₂ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	93
3.30	Profil radial de la fraction massique de H ₂ O du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	94
3.31	Profil radial de la fraction massique de CO ₂ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	95
3.32	Profil radial de la fraction massique de CO du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	96
3.33	Profil radial de la fraction massique de OH du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	96
3.34	Profil radial de la fraction massique de CH ₃ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).	97

3.35 Profil axial de la température et les fractions massiques CH ₄ et H ₂ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), litière de porcs (jaune).	98
3.36 Profil axial des fractions massiques O ₂ , H ₂ O et CO ₂ du biogaz produit à partir des différentes sources Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), litière de porcs (jaune).	98
3.37 Profil axial des fractions massiques CO, OH et CH ₃ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), litière de porcs (jaune).	99
3.38 Profil radial de la vitesse du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), litière de porcs (jaune).	100
3.39 Profil axial de la vitesse du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), litière de porc (jaune).	100
3.40 Contour de la température du biogaz sous l'enrichissement par le d'hydrogène	102
3.41 Profil radial de la température sur l'effet de H ₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH ₂ = 4% en bleu , YH ₂ = 10% en rouge, YH ₂ = 14% en jaune et YH ₂ = 24% en noire)	103
3.42 Profil radial de la fraction massique de CH ₄ sur l'effet de H ₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH ₂ = 4% en bleu , YH ₂ = 10% en rouge, YH ₂ = 14% en jaune et YH ₂ = 24% en noire)	103
3.43 Profil radial de la fraction massique de H ₂ sur l'effet de H ₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH ₂ = 4% en bleu , YH ₂ = 10% en rouge, YH ₂ = 14% en jaune et YH ₂ = 24% en noire)	104
3.44 Profil radial de la fraction massique de O ₂ sur l'effet de H ₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH ₂ = 4% en bleu , YH ₂ = 10% en rouge, YH ₂ = 14% en jaune et YH ₂ = 24% en noire)	104

3.45 Profil radial de la fraction massique de H₂O sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) . 105

3.46 Profil radial de la fraction massique de CO₂ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) . 105

3.47 Profil radial de la fraction massique de CO sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) . 106

3.48 Profil radial de la fraction massique de OH sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) . 106

3.49 Profil radial de la fraction massique de CH₃ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) . 107

3.50 Profil axial de la température et des fractions massiques de CH₄ et H₂ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) 107

3.51 Profil axial des fractions massiques de O₂, H₂O et CO₂ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire) 108

3.52 Profil axial des fractions massiques de CO, OH et CH₃ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire). 108

3.53 Profil radial de la vitesse sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire). 109

3.54 Profil axial de la vitesse sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire). 109

Liste des tableaux

1	Simulation de la combustion turbulente de différents hydrocarbures. * nombre de processeurs utilisés , # PE = simulation parallèle, NPE = simulation non-parallèle [29].	4
1.1	Production mondiale d'énergie primaire en 2015 en millions de tep (Mtep) Source : key world Energy Statistics, AIE-2017.	8
1.2	Conversion de la production d'énergie primaire en Tep au cameroun. Source : Rapport sur la situation énergétique du Cameroun, édition 2015 [53].	12
1.3	Composition en espèces majeures des biogaz issus d'ISDND, de STEP et d'installations agricoles[52]	17
1.4	Composition des différents biogaz	17
1.5	Résultats de réduction de mécanismes par l'analyse des com- posantes principales [29].	24
1.6	Résultats de la réduction de mécanismes par la méthode du Repro-modelling [29].	26
1.7	Résultats de la réduction de mécanisme par la méthode CSP [29]	31
3.1	mécanisme réduite par CSP [42]	74

Résumé

L'objectif principal de cette thèse est d'écrire un code de réduction de cinétique chimique de type "Computational Singular Perturbation" et d'appliquer le mécanisme réduit à la combustion numérique du biogaz. Cette approche de réduction est basée sur l'analyse des indices d'importances des groupes de réactions sur l'évolution des espèces et le degré de participation des réactions élémentaires. Pour valider notre code, le mécanisme de Yang et Pope a été réduit à 22 réactions réversibles. Ce mécanisme a été testé en trois étapes :

Dans un premier temps, nous avons utilisé le package Chemkin II, avec pour solveur DVODE pour la résolution des systèmes d'équations différentielles dérivant des mécanismes réduit et détaillé. Un bon accord des données numériques de la température et des fractions massiques moyennes des espèces majoritaires a été observé entre les deux mécanismes.

Dans un second temps, deux simulations numériques d'une flamme de diffusion turbulente de type "DLR-Flame A" sont faites dans le code CFD OpenFoam. "Partially Stirred Reactor" (PaSR) et le Modèle Intermittente Lagrangien (MIL) sont des modèles de combustion utilisés pour prendre en compte l'interaction entre la chimie et la turbulence. Le choix de modèle MIL est motivé par le but de valider la table de délais d'ignition du mécanisme réduit. Un bon accord est observé entre les données de simulations numériques et expérimentales suivant les profils radiaux et axiaux.

Enfin, une simulation de la combustion numérique du biogaz est faite. Ces biogaz sont issus de la digestion anaérobie des ordures ménagères, de la biomasse végétale et de la lisière de porcs. Dans le souci de proposer une optimisation du dégagement de chaleur

lors de la combustion du biogaz, nous avons proposé quatre cas tests numériques de la combustion du biogaz dopé à dihydrogène.

Au regard des résultats des applications du mécanisme réduit par notre approche CSP, nous pouvons dire que cette technique est appropriée pour réduire des mécanismes pouvant aider à faire des études numériques sur des flammes de diffusion turbulente, le taux d'inflammation, le délai d'allumage dans les bruleurs et turbines à gaz.

Mots clés : Computational Singular Perturbation, Partially Stirred Reactor, Modèle Intermittent Lagrangien, flamme de diffusion turbulente, délais d'ignition, biogaz, biogaz enrichi.

Abstract

The main objective of this thesis is to write a code to reduce the kinetics chemical mechanism by Computational Singular Perturbation method and to validate the reduced mechanism by the numerical combustion of biogas. This reduction approach is based on the analysis of the importance indices of the reaction groups on the evolution of species and the degree of participation of elementary reactions. To validate our code, the Yang and Pope's mechanism has been reduced to 22 reversible reactions. This mechanism has been validated in three steps :

Firstly, we used the chemkin II package, with DVODE solver for solving systems of differential equations deriving from reduced and detailed mechanisms. good agreement of the numerical temperature and average mass fractions of the majority species were observed between the two mechanisms.

In a second step, two numerical simulations of a turbulent diffusion DLR-Flame-A are made in CFD OpenFoam code. Partially Stirred Reactor (PaSR) and the "Modèle Intermittente Lagrangien" (MIL) are used as combustion models to take into account the interaction between chemistry and turbulence. The choice of MIL model is motivated by the aim of validating the ignition delays table of reduced mechanism. Good agreement is observed between the numerical and experimental data following the radial and axial profiles. The experimental data are obtained from the Sandia laboratory website.

Finally, a simulation of the numerical combustion of biogas is made. These biogases it is from anaerobic digestion of household garbage, plant biomass and pig slurry. In order to optimize the heat during the combustion of biogas, we have proposed four numerical tests of the combustion of dihydrogen-doped biogas. The results obtained

are satisfactory, the heat released during the combustion of biogas is proportional to the content of methane and added hydrogen.

In view of the results of the applications of the reduced mechanism by the Computational Singular Perturbation method, we claim that this technique is suitable for reducing mechanisms that may help to study turbulent diffusion flames, the rate of ignition, the ignition time on engines using natural gas or biogas.

Keywords : Computational Singular Perturbation, Partially Stirred Reactor, Modèle Intermittent Lagrangien, turbulent diffusion flame, ignition delays, biogas , enriched biogas.

symboles

Symbole	Description	Unité
a	matrice contenant des vecteurs propres de la matrice Jacobinne J .	-
A_j	Facteur pré-exponentiel de la constante de vitesse de la réaction j .	variable
$A_{\alpha\beta}$	Fonction de transfert de l'espèce β aux contraintes α .	-
b	Matrice inverse de a .	-
b^c	Matrice inverse de a_c .	-
b^s	Matrice inverse de a_s .	-
α_{kj}	Coefficient d'efficacité de collision de l'espèce k dans la réaction j	-
B_i	Sensibilité globale de l'espèce i .	-
b^c	Matrice inverse de a_c	-
b^r	Matrice inverse de a_r	-
b^s	Matrice inverse de a_s	-
C	Vecteur concentration des espèces	-
C_α	Valeur de contraintes RCCE	-
C_{lente}	Vecteur colonne des groupes de réactions lents	-
C_P^0	Chaleur spécifique à pression constante	$J.K^{-1}.mol^{-1}$
C_r	Vecteur des coefficients stœchiométriques effectifs ou réduits	-
C_{rapide}	Vecteur colonne des groupes de réactions rapides	-
D^i	Pointeur radical-CSP	-
D_n^i	Pointeur radical-CSP dans le $n^{ième}$ domaine de calcul	-
E	Nombre d'éléments chimiques.	-
E_{a_j}	Energie d'activation de la réaction j	$J.mol^{-1}$
ϵ_1, ϵ_2	Réelles positives pour éviter de diviser un nombre par zéro	-
φ	Richesse du mélange	-
Λ	Matrice diagonale des valeurs propres	-
f^c	Vitesse de groupe de réactions de sous-espace dormant.	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
f^i	Projection de g le long de a_i	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
f_i	Facteur d'efficacité pour le partenaire de collision	-

Symbole	Description	Unité
f^r	Vitesse de groupe de réactions de sous-espace rapide.	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
F^r	Taux de réaction de la $r^{ième}$ réaction.	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
f^s	Vitesse de groupe de réactions de sous-espace lent.	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
f_k	Vitesse de réaction de l'espèce k, appelée aussi Vitesse molaire	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
g	Vitesse globale de réactions	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
g_{lent}	Groupe de réactions lents	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
g_{rapide}	Groupe de réactions rapides	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
g_{β}^0	Energie libre standard de Gibbs	$J.mol^{-1}$
$\Delta_r.G_j^0$	Variation de l'enthalpie libre standard de Gibbs de la réaction j	$J.mol^{-1}$
h	Enthalpie spécifique du mélange	$J.mol^{-1}$
h_{β}	Enthalpie spécifique de l'espèce β	$J.mol^{-1}$
$\Delta_r.H_j^0$	Variation de l'enthalpie standard de la réaction j	$J.mol^{-1}$
h_n	Taux de dégagement de chaleur dans le $n^{ième}$ domaine de calcul	$J.mol^{-1}$
i	Indice parcourant les espèces	-
I	Matrice identité	-
I_k^i	Intégrateur du pointeur radical-CSP	-
I_r^i	Importance de la $r^{ième}$ réaction sur l'évolution du $i^{ième}$ réactant	-
j	Indice parcourant les réactions	-
J	Matrice jacobienne de g	-
k_j	Constante de vitesse de la réaction j	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
k_{c_j}	Constante d'équilibre de la réaction j en unité de concentration	Variable
k_{d_j}	Constante de vitesse direct de la réaction j d'ordre m.	$(mol.cm^{-3})^{1-m}.S^{-1}$
k_{p_j}	Constante d'équilibre de la réaction j en unité de pression	Variable

Symbole	Description	Unité
k_{rj}	Constante de vitesse inverse de la réaction j d'ordre m.	$(mol.cm^{-3})^{1-m}.S^{-1}$
K_j^i	Importance du $j^{ième}$ groupe de réactions.	-
λ_k	Valeur propre de l'espèce k	s^{-1}
L_{lent}	Vecteur ligne des groupes de réactions lents.	-
L_{rapide}	Vecteur ligne des groupes de réactions rapides.	-
L_{ss}	Vecteurs colonnes des fractions massiques des espèces rapides.	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
M	des Nombre de goupes (modes) de réaction rapides	-
\dot{m}	Débit massique	$g.s^{-1}$
M_k	Masses molaires moléculaires de l'espèce k	$g.mol^{-1}$
n	Exposant à la température	-
N	Nombre d'espèces chimiques	-
$N_{A,j}$	Nombre total d'atomes A dans le membre de gauche de la réaction j	-
N'_k	Nombre d'espèces chimiques dans le membre de gauche	-
P_0	Pression standard	bar
P_m	Pointeur sur les réactions rapides	-
Q	Perte de chaleur du réacteur	$J.S^{-1}$
$Q(M)$	Pointeurs CSP	-
q_n^i	Taux de production de la $i^{ième}$ espèce dans le $n^{ième}$ domaine de calcul	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
q_{max}^i	Taux de production maximal de la $i^{ième}$ espèce	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
ρ	Densité massique (ou masse volumique)	$g.cm^{-3}$
R_u	Constante universelle des gaz parfaites	$J.K^{-1}.mol^{-1}$
$R_{n,sum}$	Somme de tous les pointeurs des radicaux dans le $n^{ième}$ domaine de calcul.	-
R_n^i	Intégrant de la $i^{ième}$ espèce dans le $n^{ième}$ domaine de calcul	-
R_r	Vecteur de taux de réactions des réactions élémentarises rapides	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$

Symbole	Description	Unité
R_{N_r-M}	Vecteur de taux de réactions des réactions élémentarises lentes	$mol.cm^{-3}.S^{-1}$
S_r	Coefficient stœchiométrique de la $r^{ième}$ réaction	-
τ	Temps de séjour	s
τ_{eq}	Temps de séjour pour lequel l'équilibre est considéré comme atteint	s
τ_{net}	Temps de séjour correspondant à la limite d'extinction	s
t	temps	S
T	température	K
V	Volume du réacteur	cm^{-3}
v_{ij}	Coefficient stœchiométrique de l'espèce i dans la réaction j	-
W_k	Masse molaire de l'espèce k	$g.mol^{-1}$
\bar{W}	Masse molaire moyenne.	$g.mol^{-1}$
W_n^i	Rapport entre l'intégrant R_n^i et $R_{n,sum}$.	-
X_k	Symbole de l'espèce chimique k.	-
X_n^i	Concentration de la $i^{ième}$ espèce dans le $n^{ième}$ domaine de calcul	$mol.cm^{-3}$
Y	Vecteur des fractions massiques	-
$Y_{i;0}$	Valeur initiale de la fraction massique de l'espèce i	-

Abréviations

<i>Abréviations</i>	Description
ACP	Analyse des Composantes Principales
AEP	Approximation des Equilibres Partiels
AEQS	Approximation de l'Etat Quasi-Stationnaire
AIE	Agence d'Information sur l'Energie
CFD	Computational Fluid Dynamic
CSP	Computational Singular Perturbation
GRI	Gas Research Institute
EDC	Eddy Dissipation Concept
EDO	Equation Différentielle Ordinaire
EQS	Etat Quasi-Stationnaire
Hysacam	Hygiène et salubrité du Cameroun
MPI	Message Passing Interface
Mtep	Millions de tep
NASA	National Aeronautics Space Administration
ILDm	Intrinsic Low-Dimensional Manifold
OpenFOAM	Open Field Operation and Manipulation
PSR	Perfectly Stirred Reactor
QSS	Quasi-Steady-State
RCCE	Rate-Controlled Constrained-Equilibrium
TEP	Tonne Equivalent Pétrole 1 TEP = 11,6 MWh
VODE	Variable-coefficient Ordinary Differential Equation

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Intérêt et contexte de l'étude

L'un des plus grands dilemmes de ce siècle se trouve être la problématique des sources énergétiques. Les énergies fossiles constituent une source énergétique prisée. Cependant, il est difficile de concilier leurs exploitations avec les exigences des concepts de développement durable. Les ressources fossiles sont responsables du réchauffement climatique et présentent des effets néfastes sur l'écosystème. Plusieurs études sur la prospective des énergies fossiles prédissent leur disponibilité pour une quarantaines d'années [1]; le défi actuel est la nécessité de trouver une alternative à la dépendance énergétique vis-à-vis des énergies fossiles : les énergies renouvelables. Le biogaz est une alternative satisfaisante du biocarburant gazeux, qui peut être produit à partir de plusieurs ressources et déchets organiques [2, 3]. La digestion anaérobie est une garantie pour le traitement des déchets biodégradables, le résultat de cette digestion anaérobie produit un gaz combustible précieux et par conséquent un volume de déchets réduit est disponible [4, 5]. La production du biogaz joue un rôle considérable, sa combustion n'est pas à 100% propre, néanmoins, il ne contribue pas au réchauffement climatique [6]. Au contraire, cela aide à le combattre. L'un des motivations pour l'étude de la combustion est que le sujet en lui-même est intellectuellement stimulant en raison du couplage entre la physique et la chimie : la thermodynamique chimique et la modélisation à la pratique d'ingénierie. La variété des applications pratiques de la combustion provient de la richesse des moyens par lesquels la chaleur résultant de la combustion peut être appliquée. La combustion des combustibles fossiles et non fossiles, tels que le charbon, le pétrole, le gaz naturel, la biomasse (biogaz) et le propane continuent d'occuper une place importante dans

la consommation énergétique mondiale. L'augmentation de la consommation mondiale du gaz naturel et du biogaz (biométhane) ont une croissance la plus rapide dans les perspectives. Le biogaz, comme tous les combustibles est caractérisé numériquement par un mécanisme de cinétique chimique détaillé.

La simulation numérique des phénomènes physiques et chimiques impliquant un mécanisme de cinétique chimique détaillé de dimension élevée n'est pas toujours aisée quand elle est caractérisée par un large spectre d'échelles de temps. Parallèlement à la montée en puissance des ordinateurs, de nombreuses équipes de recherche à travers le monde tentent de pousser plus loin la compréhension et la connaissance des processus physico-chimiques survenant lors des interactions entre les particules (molécules).

En physique de l'atmosphère ou physique de l'environnement, la modélisation de la dispersion des polluants réactifs dans l'atmosphère nécessite une description appropriée de la chimie utilisée et du transport des polluants. La description de la chimie de l'atmosphère ne cesse de s'élargir pour inclure de nouveaux polluants à l'état de traces, ce qui entraîne un mécanisme de cinétique chimique énorme, comptant plusieurs milliers de réactions chimiques élémentaires, une centaine ou millier d'espèces chimiques [7, 8]. Ces mécanismes aussi complexes doivent être utilisés, par exemple, dans de modèles tridimensionnels (3-D) pour des problèmes de dispersion à l'échelle urbaine [9], en suite, il faut résoudre un nombre prohibitif d'équation pour chaque pas d'intégration. Les mécanismes de réactions chimiques en phase gazeuse les plus largement utilisés en physique environnementale, y compris ceux utilisés dans le modèle tridimensionnels (3-D) ont été développés principalement pour la formation de la couche d'ozone dans un large éventail de conditions. Les mécanismes généralement utilisés sont ADOM-II [10], CBM-IV [11]; RADM2 [12]; RACM [13]; EMEP [14, 15]; MCM [16, 17] et COV [18, 19]. La dispersion des polluants dans l'atmosphère implique à la fois des processus chimiques et physiques qui se produisent sur une large gamme d'échelle. Les espèces chimiques qui se transforment en espèces polluants doivent être incluses dans des différents types de modèles mathématiques développés pour le calcul de dispersion.

En physique énergétique plus particulièrement en combustion, les mécanismes de cinétiques chimiques détaillés sont développés pour décrire la formation des suies; repré-

senter l'auto-inflammation dans les moteurs diesel ; les turbines à gaz ; rendre compte du cliquetis dans les moteurs ; simuler la combustion supersonique dans les turbines d'avions ou bien encore la propagation de flammes 2D ou 3D (tableau 1). Les modèles de cinétiques chimiques détaillés nécessaires à la bonne représentation de ces phénomènes sont de plus en plus précis, et donc inévitablement, contiennent de plus en plus d'espèces et de réactions chimiques. Ces mécanismes peuvent comporter quelque dizaines d'espèces et plusieurs centaines de réactions élémentaires dans le cas des hydrocarbures les plus simples : le mécanisme du "Gas Research Institute", GRI-Mech 3.0 pour le méthane (biogaz), souvent cité dans la littérature, contient 53 espèces et 325 réactions [20]. Cette croissance du nombre d'espèces est constatée dans la construction de mécanismes représentatifs d'hydrocarbures purs de plus en plus lourds comme le n-heptane [21, 22, 23], le n-décane [24], le kérosène [25, 26, 27], le gazole [28]. Parmi ces différents mécanismes, il n'est pas rare de rencontrer plusieurs centaines d'espèces et milliers de réactions : 298 espèces et 2352 réactions pour le modèle du gazole, 473 espèces et 2411 réactions pour le modèle de l'iso-octane, 1216 espèces et 7920 réactions pour le modèle du n-décane. Classiquement, ces mécanismes sont construits par un empilement successif des différents sous-mécanismes représentant les réactions des nouveaux composés et intermédiaires mis en jeu, et validés par des données expérimentales.

La mise en œuvre d'une chimie de plus en plus complexe, à la fois représentative et prédictive, se heurte cependant très rapidement aux contraintes des codes de calcul industriels et interdit pratiquement de pouvoir coupler ces phénomènes avec une cinétique détaillée. Pour illustrer notre propos sur ces difficultés de couplage, nous avons choisi dans la littérature quelques exemples de temps de calcul obtenus avec différents types de calculateurs, pour différents cas de combustion turbulente (2D et 3D) où une chimie détaillée a été introduite.

Dans le tableau 1, selon le type d'étude, en 2 dimensions (calcul réalisé à l'aide d'un seul processeur, symbole : NPE), ou en 3 dimensions (calcul effectué grâce à des « simulations parallèles », c'est à dire simultanément sur plusieurs processeurs, symbole : PE) sont répertoriées, les temps de calcul nécessaires à la simulation (quatrième colonne). En nous appuyant sur des travaux de Jocelyn Luche (64 processeurs = accé-

lération du calcul d'un facteur 60, 256 processeurs = accélération de 200, configuration = 450 MHz/512 Mo RAM), il a estimé les temps de calcul de la combustion turbulente 3D qui correspondraient à l'utilisation d'un processeur unique, la configuration la plus répandue à l'heure actuelle compte tenu du coût financier d'une installation multi-processeurs. Les résultats obtenus (après le symbole \Leftrightarrow) avec monoprocesseur, montrent bien que le couplage entre la « physique » et la « chimie détaillée » même simple, entraîne des temps de calcul estimés tellement élevés (jusqu'à 25 ans) qu'il ne peut être envisagé actuellement pour des mécanismes de taille supérieure.

TABLE 1 – Simulation de la combustion turbulente de différents hydrocarbures. * nombre de processeurs utilisés , # PE = simulation parallèle, NPE = simulation non-parallèle [29].

Modèles détaillés	Type de simulation	de Système de calcul	Temps de calcul
9 espèces 19 réactions	Flammes turbulentes (2D)	CRAY-C98	~ 100 h (1*/NPE#)
53 espèces 325 réactions	Flammes turbulentes prémélangées (2D)	AMD Athlon 700	qq j à sem. (1*/NPE#)
29 espèces 73 réactions	Propagation de flammes turbulentes (2D)	CRAY C-90 NEC SX5	(1*/NPE#) > 25 h 2 à 3 j
9 espèces 27 réactions	-Auto-inflammation dans une couche de mélange turbulente	CRY T3E	~ 23 h (256*/PE#)
15 espèces 84 réactions	-Combustion turbulente (3D)		\Leftrightarrow 180 j (1*/NPE#)
20 espèces 84 réactions	Comportement d'une flamme prémélangée turbulente de méthane en 3D	IBM SP3	750h (64-96*/PE#) \Leftrightarrow 5 à 8 ans (1*/NPE#)
12 espèces 27 réactions	Propagation de flammes turbulentes en 3D	SR2201	~ 3600h (64*/PE#) \Leftrightarrow 26 ans (1*/NPE#)

Le facteur pénalisant au niveau du temps de calcul est la résolution du système d'équations différentielles (ou ODE) de conservation de la masse : 80% à 95% du temps total pour la combustion turbulente d'un système simple tel l'hydrogène [29].

Cet handicap a donc conduit les cinéticiens à mettre en place des techniques de réduction de mécanisme dans le but de minimiser le nombre d'espèces et de réactions chimiques, tout en assurant une représentation correcte du système chimique. Cette opération passe par une sélection méticuleuse des comportements que ce mécanisme

réduit doit reproduire, en conservant à l'esprit que le schéma réduit obtenu ne peut être meilleur que l'original.

Il existe dans la littérature plusieurs méthodes de réduction de la cinétique chimique, nous pouvons citer entre autres : la méthode Repro-modelling [30], l'Analyse de Sensibilité [31, 32], l'Analyse des Flux Atomiques [33], la méthode polynomiale[34], la méthode ILDM (Intrinsic Low-Dimensional Manifold) [35, 36], la méthode directe relationship graph (DRG) [37, 38, 39], plusieurs approches sont basées sur l'état quasi-stationnaire [40]; « Rate-Controlled constrained-Equilibrium » (RCCE) [41, 42, 43] et la méthode "Computational Singular Perturbation" (CSP) [44, 45, 46, 47, 48, 49] qui fait l'objet de notre étude.

Objectifs de la thèse

L'objectif principal de cette thèse est d'écrire un code de réduction de cinétique chimique de type « Computational Singular Perturbation » basée sur l'analyse des indices d'importances des modes ou groupes de réactions sur l'évolution des espèces chimiques et le degré de participation des réactions élémentaires. La réalisation de ce projet passe par l'atteinte de certains objectifs intermédiaires :

- Deux objectifs à atteindre, souvent antagonistes, à savoir une diminution maximale du temps de calcul ainsi que le maintien de la prédictivité du modèle détaillé ;
- Valider le mécanisme réduit par la simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente de type « DLR Flame A » ;
- Valider la table de délais d'ignition du mécanisme réduit par cette approche CSP ;
- Utiliser le mécanisme réduit pour simuler une combustion numérique turbulente du biogaz.

Les travaux de cette thèse sont structurés en trois chapitres :

- Le premier chapitre fait un tour d'horizon sur la situation énergétique au Cameroun, en particulier la part du biogaz. Ce chapitre présente également l'importance de la cinétique chimique pour la simulation numérique des flammes de diffusion turbulente et

surtout la difficulté liée à l'utilisation des mécanismes complexes. Quelques méthodes pour palier à ce problème sont présentées, à savoir les méthodes de réduction des mécanismes de cinétiques chimiques détaillés.

-Le chapitre 2 présente des différents outils mathématiques et numériques utilisés dans ce travail. Dans un premier temps, il traite des outils mathématiques du Package Chemkin-II et de la méthode de réduction de la cinétique chimique de type "Computational Singular Perturbation" (CSP). Il présente également le code CFD OpenFoam et les différents modèles de combustion turbulente et de turbulence.

-En fin, le dernier chapitre présente les résultats et discussions des travaux de cette thèse. Les résultats sont présentés en deux étapes : validation du code CSP et validation du mécanisme réduit.

GÉNÉRALITÉS SUR LE BIOGAZ, LA COMBUSTION ET LES MÉTHODES DE RÉDUCTION DE LA CINÉTIQUE CHIMIQUE.

1.1 Introduction

La modélisation de la combustion est nécessaire pour traiter les principaux inconvénients de la combustion, l'un de ce principal inconvénient est la pollution de l'environnement. Les problèmes de pollutions sont liés au réchauffement climatique. Les produits de combustion sont principalement des hydrocarbures imbrûlés, du monoxyde de carbone (CO), du monoxyde de soufre et d'azote (NO_x et SO_x) accompagnés de diverses formes de particules. Selon l'Agence Internationale d'Énergie (AIE, 2015), les émissions mondiales de dioxyde de carbone résultant de la consommation d'énergie devraient augmenter de 1% par an, entre 2008 et 2035, passant d'environ 30 milliards de tonnes métriques en 2008 à 43 milliards de tonnes métriques en 2035 [50]. La nécessité de prédire et de contrôler les polluants contribue de manière significative à l'analyse de la combustion. L'une des voies les plus prometteuses pour résoudre ce problème est de passer aux énergies nouvelles. Dans ce chapitre, est présenté des différentes sources d'énergies renouvelables, particulièrement celle du biogaz au Cameroun, il montre également l'importance de la cinétique chimique et la combustion du biogaz comme source d'énergie. Le biogaz, comme tout autre combustible est caractérisé par un mécanisme de cinétique chimique. L'une des difficultés liées à la simulation numérique d'une flamme de turbulente est la complexité des mécanismes de cinétiques chimiques détaillés, qui entraîne le temps de convergence des résultats extrêmement élevé. L'une des voies énumérées dans ce chapitre est la réduction de la taille des mécanismes et plusieurs

méthodes de réduction y sont présentées.

1.2 L'augmentation de la consommation d'énergie

Jusqu'à la fin du XVIIIème siècle, l'expansion de l'homme s'est faite en utilisant l'énergie des animaux, du vent, de l'eau et du bois [29]. Cependant, ce développement entraînait la déforestation qui fut évitée en Europe grâce à la découverte de la houille. L'apparition des machines avec l'ère industrielle a relancé la croissance démographique et la demande en énergie. La deuxième moitié du XXème siècle a vu le pétrole s'installer comme énergie reine, suivi du gaz naturel. Parallèlement l'énergie nucléaire et les énergies renouvelables se sont développées. Cependant, à l'aube du troisième millénaire, la majorité de l'énergie primaire est issue de stocks d'énergie non renouvelable qui sont responsables d'émissions importantes de dioxyde de carbone. La situation dans les premières années du 21ème siècle peut se résumer par le tableau 1.1.

TABLE 1.1 – Production mondiale d'énergie primaire en 2015 en millions de tep (Mtep)
Source : key world Energy Statistics, AIE-2017.

Sources primaire	Mtep	%
Pétrole	4 326	31,7
charbon	3 835	28,1
Gaz naturel	2 948	21,6
Nucléaire	669	4,9
Hydraulique	341	2,5
Renouvelable + déchets	1 528	11,2
TOTAL	13 647	100

Il ressort de ce tableau que plus de 80% de la production mondiale d'énergie a été basée en 2015 sur les combustibles fossiles avec une augmentation sensible de la production de charbon au détriment des autres sources. On constate, par ailleurs, que 86,8% de la production mondiale d'énergie primaire a été basée sur des ressources non renouvelables, sans changement par rapport à 2010. La figure 1.1 en montre la croissance, ainsi que la part de chaque source ; on notera la part croissante du charbon. Le solaire photovoltaïque compte pour environ 47% de ces capacités additionnelles, suivi de l'éolien (34%) et l'hydroélectricité (15,5%), selon le rapport de référence Renewables 2017 Global Status Report (GSR). Au niveau mondial, les énergies renouvelables représentent

dorénavant en 2017, 19,3 % de la consommation finale d'électricité contre 78,4 % pour les combustibles fossiles et seulement 2,3 % pour le nucléaire.

L'utilisation des énergies fossiles entraînent une augmentation de taux de CO₂, Il est clairement établi que l'activité humaine due à ces énergies est responsable de cette augmentation.

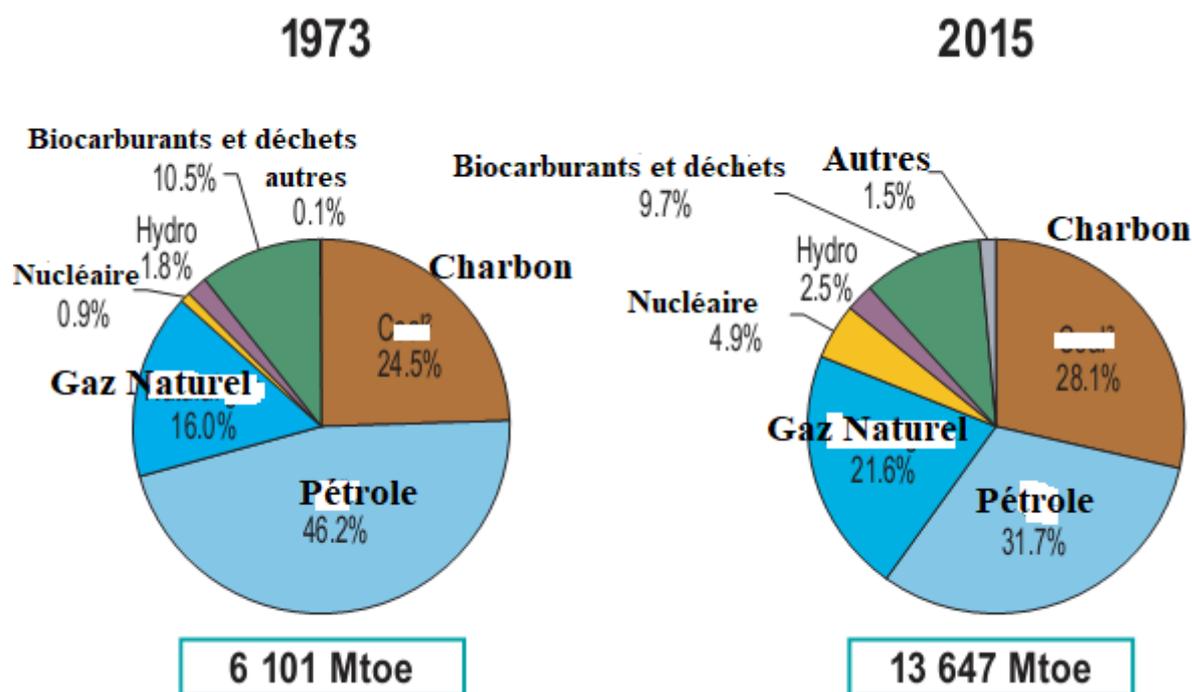


FIGURE 1.1 – Evolution de la production d'énergie primaire (en millions de tep) par source. Source : Key World Energy Statistics, IEA – 2017

L'augmentation du taux de CO₂ dans l'air entraîne une augmentation de la température (réchauffement global de la planète terre). Il est plus que nécessaire aujourd'hui de se tourner vers les énergies dites renouvelables afin de protéger notre planète. Une autre raison importante de se tourner vers le développement d'énergie durable est le problème des réserves d'énergies. En effet, bien que les réserves de pétrole étaient estimées dans les années 70 à une trentaine d'années, et qu'aujourd'hui, ces réserves sont toujours estimées à trente ans (malgré les trente années de consommation), elles n'en sont pas pour autant inépuisables [1]. Cette constance est justifiée probablement par les nouvelles découvertes de gisement pétroliers. Depuis 1980 la production annuelle de pétrole est le double des découvertes. Suivant les sources plus ou moins pessimistes le

pic de production de pétrole devrait avoir lieu entre 2010 et 2030 [1]. Ce pic de production devrait entraîner une hausse inévitable du prix du baril. Les sources d'énergies renouvelables deviendront alors plus compétitives en termes de coût.

1.2.1 Les nouvelles énergies.

De nombreuses sources d'énergies renouvelables sont envisageables (Figure 1.2). Par exemple, recouvrir seulement une petite partie du Sahara (moins de 1%) de panneaux solaires pourrait permettre de produire plus d'électricité que la planète n'en consomme à l'aide d'une énergie gratuite et en utilisant une terre impropre à un autre usage. Malheureusement le coût lié à la réalisation d'une telle installation est très élevé, le projet reste infaisable car il reste des problèmes liés au transport de l'électricité qui sont insurmontables dans l'état des connaissances actuelles [51].

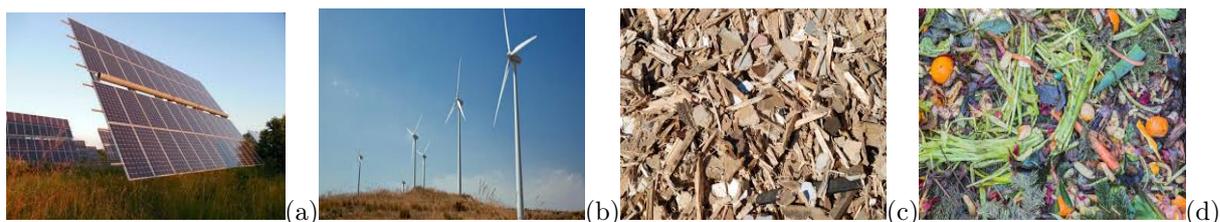


FIGURE 1.2 – Différentes sources d'énergies renouvelables : photovoltaïque (Solaire) (a), éolien (b), biomasse (c) et ordures ménagères (d). Source : Google map.

L'énergie hydraulique présente également un potentiel important particulièrement en Afrique (Figure 1.3). L'investissement financier reste cependant énorme et l'impact écologique de ces réalisations n'est également pas à négliger (modification du paysage, inondation de grande superficie de terre, évacuation forcée de population entière...).



FIGURE 1.3 – Images des barrages hydroélectriques de Lom pangar (a) et Nachtigal (b) au Cameroun. Source : Google map.

L'éolien se présente également comme un nouvel acteur de l'énergie (Figure 1.2 (b)). Les progrès de cette technologie ont permis d'abaisser son coût et de la rendre compétitive dans les sites favorables à son usage. La production d'électricité éolienne reste cependant faible à l'échelle nationale.

Le biogaz est également l'un des nouveaux acteurs de l'énergie (biocarburant gazeux). Durant les années 80 quelques 6 million de digesteurs furent installés à travers la Chine (dans les milieux ruraux) [51]. Ils permirent de fournir de l'énergie (principalement pour la cuisson des aliments), mais aussi de protéger l'environnement tout en améliorant l'hygiène. Il est possible de fabriquer de petits digesteurs qui ne nécessitent pas de compétence particulière pour être entretenus. Ils permettent de fournir l'énergie nécessaire à la cuisson des aliments et même la production d'électricité (à l'aide des générateurs adaptés). La Figure 1.4 schématise la répartition des principales sources d'émission de méthane (rejets atmosphériques) dans le monde. 30 à 40 % des émissions sont d'origine naturelle, les sols inondés étant la source majeure. 60 à 70 % des émissions de méthane sont d'origine anthropique. L'élevage (ruminants domestiques) et la riziculture, responsables de 20 à 50 % de ces émissions, font de l'agriculture la principale source de CH₄ anthropique. Notons que, toutes sources confondues, le méthane atmosphérique est pour 70 -80 % d'origine biologique (digestion anaérobie) [52].

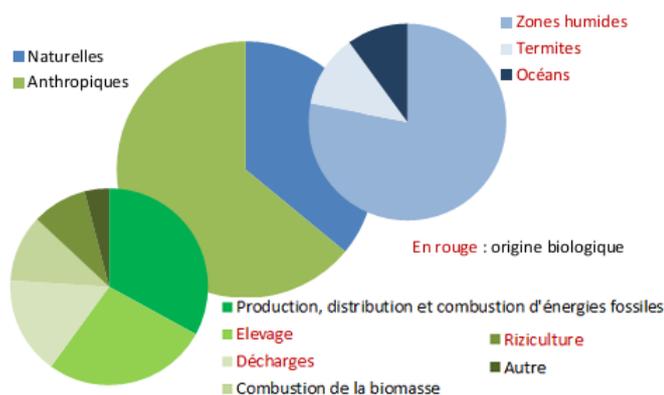


FIGURE 1.4 – Répartition des sources d'émission de méthane (rejets atmosphériques) d'origine naturelle et anthropique dans le monde [52]

1.2.2 L'énergie au Cameroun et la part du biogaz.

Le secteur de l'énergie au Cameroun est caractérisé par une offre insuffisante mais

des gisements potentiels de gaz naturel, d'énergie hydroélectrique et autres énergies renouvelables (Solaire, biomasse, biogaz, éolien) important.

Le pétrole, exploité vers des années 1980, et contribuant de façon significative à la balance commerciale (50% des exploitations), a connu son pic de production en 1985. Le tableau 1.2 présente la production de l'énergie primaire au Cameroun en 2014 [53].

TABLE 1.2 – Conversion de la production d'énergie primaire en Tep au Cameroun. Source : Rapport sur la situation énergétique du Cameroun, édition 2015 [53].

Produits	Libellé	Production	Unité	Facteur de conversion	Données converties en kTep
Pétrole brut*		27,5	millions de barils		
		3 731 475	tonnes métriques	1,022	3 651,15
Gaz Naturel*		10,81	milliards de pieds cube	26	281,06
Electricité					
- hydroélectricité		4 425,10	Gwh	1/11,63	380,49
- solaire		3,833	Gwh	1/11,63	0,33
- éolien		0,0823	Gwh	1/11,63	0,007
- petite hydroélectricité ⁵		0,576	Gwh	1/11,63	0,05
Bois-énergie		140 002,22	téra joules	1/41,868	3 343,90

Au regard du tableau 1.2, l'énergie primaire est dominée au Cameroun par le pétrole brut (47,68 %) suivie du bois-énergie (43,67 %), Gaz naturel (3,67 %) et électricité (4,98 %). La production des énergies renouvelables reste négligeable face aux autres sources d'énergies primaires. Concernant l'énergie électrique, la production totale en 2014 a été estimée à 7 688,45 GWh avec les proportions suivantes : 57,56% d'hydroélectricité, 21,6% de thermique publique, 20,79% d'autoproduction thermique (onshore et offshore) et 0,06% d'énergies renouvelables. Malgré un potentiel énergétique (hydroélectricité) estimé à 23 000 MW par les experts, l'offre reste inférieure à la demande nationale [53].

1.2.2.1 Puissance globale d'énergie installée au Cameroun

D'après le rapport sur la situation énergétique du Cameroun, édition 2015, des réalisations programmées dans la vision d'émergence du Cameroun permet d'observer que les

capacités énergétiques du pays se sont substantiellement accrues au cours des années 2010 et 2014. En effet, la puissance installée pour la production d'énergie électrique publique en 2014 est évaluée à environ 1 354 MW contre 1 009,7 MW en 2010 soit un accroissement de 344,3 MW depuis la mise en œuvre des grands projets énergétiques. Cette avancée est principalement due à la mise en service de la centrale à gaz de Kribi (216 MW) en 2013 et de celles du Programme thermique d'Urgence (100 MW) [53].

1.2.2.2 Exploitation du Biogaz au Cameroun

Entre 2013 et 2015, l'organisme de coopération Néerlandaise (SNV), a construit 164 Bio-digesteurs permettant aux ménages des zones rurales de la région de l'Adamaoua (dans la partie septentrionale du Cameroun) de produire du Biogaz à partir de la bouse de vache. Ces investissements ont été réalisés dans le cadre du projet « Biogaz domestique au Cameroun ». Ce projet arrivé au terme le 30 Juin 2015 a permis de former 57 techniciens à l'utilisation des bio-digesteurs et a touché 30 000 personnes dans 200 villages de la région de l'Adamaoua [53].

En effet, la production du Biogaz au Cameroun demeure embryonnaire. Hormis des projets tels que celui susmentionné, seule la société Hygiène et salubrité du Cameroun (Hysacam, Figure 1.5), qui gère des contrats de ramassage des ordures dans le pays, conduit actuellement des initiatives de production du Biogaz grâce à la construction, à Douala et Yaoundé, de deux centrales de captage à proximité de ses décharges.



FIGURE 1.5 – Quelques images des agents de la société Hygiène et salubrité du Cameroun (Hysacam) en activités.

1.2.2.3 Pourquoi utiliser le biogaz ?

Au cours des dernières décennies, la production de déchets et d'effluents organiques ne

cessent de croître au Cameroun et dans la plupart des pays en cours d'industrialisations. Cette production de produits organiques place notre pays face à un redoutable défi. En effet, ces produits et leur gestion constituent une source de nuisances pour l'homme et son environnement (pollution des sols, des eaux, de l'atmosphère, Figure 1.6) , mais également et de façon paradoxale, une ressource renouvelable potentielle dont il convient de tirer parti dans le triple objectif de réduire son impact sur l'environnement, d'anticiper les évolutions réglementaires et de valoriser son potentiel énergétique et agronomique, et donc économique.



FIGURE 1.6 – Déchets organique, source de nuisances pour l'homme et son environnement.

C'est dans le cadre de la protection de l'environnement qu'a de nouveau émergé le procédé de méthanisation (Biogaz) au Cameroun. Ce procédé biologique vise à produire, à partir de déchets et d'effluents organiques, un biogaz principalement composé de méthane et de dioxyde de carbone. Le biogaz peut être valorisé, entre autres, par cogénération pour produire de l'électricité et de la chaleur. Ainsi, par substitution avec les énergies fossiles, le développement de la méthanisation participe au développement des énergies renouvelables et à la réduction des émissions de gaz à effet de serre. Ce procédé se développe autour de quatre principaux flux de déchets et effluents organiques : les biodéchets ménagers et les ordures ménagères résiduelles, les déchets et coproduits organiques de l'agriculture, les déchets organiques des agro-industries et les boues issues des unités de traitement des eaux usées.

1.2.2.4 Les sources de la matière première

Les substrats permettant de réaliser une digestion anaérobie sont principalement les

effluents d'élevage, les eaux usées urbaines, la fraction organique des ordures ménagères et les déchets agroalimentaires (Figure 1.7).



FIGURE 1.7 – Quelques substrats permettant de réaliser une digestion anaérobie : fosse septique (a), bouse de vache (b), matière organique (c) et ordure ménagère (d). Source : Google map.

a) Les décharges

La production des ordures par habitant ne cesse de croître au Cameroun depuis des dernières décennies. Par jour, la quantité d'ordure produit par un Camerounais n'est pas négligeable. La grande partie de ces déchets est biodégradable (composé de papiers, cartons et matières putrescibles) (Figure 1.7 (a) et (c)) et donc susceptible d'être valorisées en biogaz.

b) Les effluents d'élevage

L'élevage de porcs, de bovins et de volailles produit plusieurs millions de tonnes de déchets par an au Cameroun. Le traitement de ces déchets est donc essentiel pour éviter la pollution et les nuisances créées par ces concentrations très importantes d'animaux. De plus, les déchets d'animaux contiennent de nombreux microorganismes pathogènes pour l'homme et les animaux. La digestion anaérobie permet de les détruire et d'éviter ainsi les risques provoqués par les méthodes d'épandage classique de lisiers non traités. De plus le fertilisant obtenu par la digestion anaérobie possède les mêmes propriétés agronomiques et présente l'avantage de libérer l'azote plus rapidement que celui obtenu par les méthodes classiques. La production de biogaz peut également devenir une source de revenu pour les éleveurs.

c) Les boues des stations d'épuration

Le principal but de la méthanisation des eaux usées est de réduire les nuisances olfac-

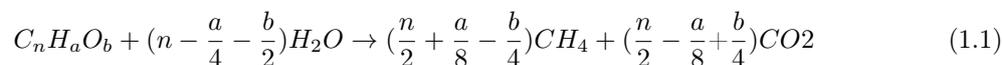
tives et de réduire les volumes de déchets. De plus la méthanisation permet à la station d'être plus ou moins autonome en énergie.

d) Les effluents des industries agroalimentaires

La méthanisation permet d'éviter le rejet de matières organiques trop riches, et peut s'accompagner d'une valorisation énergétique.

1.2.2.4 Composition du biogaz

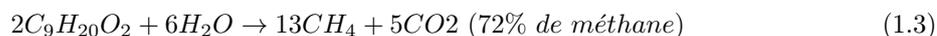
Le biogaz contient principalement du méthane et du gaz carbonique. La proportion de ces deux gaz dépend de la nature du substrat, et plus précisément de la proportion Carbone - Hydrogène - Oxygène - Azote (CHON). Un substrat riche en C et H produit une forte proportion de méthane, jusqu'à 90 %. Un substrat moyennement riche, produit un biogaz contenant typiquement 55 % de méthane et 45 % de gaz carbonique. La teneur en biogaz du méthane varie entre 25 et 70% [51]. La production du biogaz est donnée à partir de l'équation classique de BUSWELL [51] :



Ainsi, pour les glucides (formule générique CH_2O), l'équation donne :



En revanche, pour un corps gras :



Le biogaz ne contient pas que du méthane et du gaz carbonique en proportion variable. Des composés soufrés (H_2S , mercaptans) et des composés azotés (ammoniac, azote) sont généralement présents dans le biogaz en faible quantité (<1000 ppm) . De l'hydrogène, des produits intermédiaires de fermentation (alcools, acides, esters...), des siloxanes et des organochlorés sont également présents dans le biogaz à l'état de traces [51].

1.2.2.5 Composition en pourcentage chimique des espèces majoritaires.

Une synthèse de la composition en constituants majeurs des biogaz selon leur origine (Installations de Stockage de Déchets Non Dangereux (ISDND), stations d'épuration (STEP), digesteur agricole) a été dressée dans le Tableau 1.3.

TABLE 1.3 – Composition en espèces majeures des biogaz issus d'ISDND, de STEP et d'installations agricoles[52]

espèces en % v/V	ISDND	STEP	Agricole
CH ₄	25-61	50-75	50-75
CO ₂	14-55	19-49	19-45
N ₂	0-49	0-2	≤2
O ₂	0-8	≤ 1	≤2
H ₂ O	4-15	6-16	2-14

Dans la littérature, nous avons répertorié la composition chimique en pourcentage (volume) du biogaz produit à partir des différents substrats (boues de stations d'épuration (STP), centre d'enfouissement technique (CET), Ordures ménagères (OM), agro-alimentaire, bouse de vache, lisier de porc et décharges), tableau 1.4.

TABLE 1.4 – Composition des différents biogaz

Références	[54]	[54]	[54]	[52]	[54]	[2]
Composés	Boues de STEP	CET	Agro-alimentaire	Ordures ménagères	litière de porc	Biomasse végétale
CH ₄ (%)	61,6	47,4	68	30	64,6	54,7
CO ₂ (%)	27,6	47	26	22	24,7	41,96
O ₂ (%)	-	-	-	9,6	-	0,375
N ₂ (%)	3,21	3,7	1	38,4	5,63	-
H ₂ (%)	0,00001	0,1	-	-	5,6	4
H ₂ O (%)	16,4		5	-	13,7	-
CO ppm	29	0,1		-	-	-
H ₂ S (ppm)	3150	-	-	-	1510	-

1.2.2.6 Pouvoir calorifique du biogaz.

Le pouvoir calorifique d'un combustible est la quantité de chaleur dégagée par la combustion complète d'une unité de masse ou de volume de ce combustible. Le biogaz est un combustible dont la valeur énergétique se mesure en PCI (Pouvoir Calorifique Inférieur lorsque l'eau produite par cette combustion reste à l'état vapeur) comme le gaz naturel. Le PCI du biogaz est proportionnel à sa teneur en méthane, par exemple

pour un biogaz à 70 % de méthane à 15°C et à pression atmosphérique normale, le PCI est égal à $9,42 \times 0,7 = 6,59 \text{ kWh.m}^{-3}$ ($1 \text{ kWh.m}^{-3} = 860,421 \text{ Kcal.m}^{-3}$) [54].

Le biogaz possède relativement un PCI faible (3000-6000 Kcal.m^{-3}) et un taux de dégagement de chaleur inférieur à celui des combustibles conventionnels, ce qui limite l'application du biogaz dans les outils de combustion. Somehsaraei et al. [55] ont développé un état stable de modèle thermodynamique pour l'application du biogaz dans des micro-turbines à gaz de 100 KW. Ils ont trouvé que le débit massique et le rapport de pression dans les micro-turbine à gaz sont inférieurs à ceux des turbines à gaz naturel. De plus, l'efficacité électrique totale diminue avec la diminution de la teneur en CH₄ dans le biogaz combustible, et l'utilisation du biogaz affecte négativement la récupération de la chaleur.

La température de la combustion sans flamme d'un four à biogaz est inférieure à la combustion traditionnelle dans une chambre de combustion. Plusieurs études expérimentales et numériques ont exploré les caractéristiques des biogaz combustibles. Dans ces études, des carburants de haut niveau tels que H₂ [56, 57, 58] sont mélangés avec du biogaz pour améliorer les caractéristiques de combustion relativement médiocres du biogaz. Zhen et al. [56] ont étudié expérimentalement l'effet de l'addition de H₂ sur les caractéristiques d'un biogaz à flamme de diffusion. Ils ont constaté que l'addition de H₂ améliorerait considérablement la stabilité de la flamme du biogaz, la température de la flamme a visiblement augmenté avec l'ajout du dihydrogène.

La recherche actuelle propose la combustion turbulente d'une flamme non prémélangée du biogaz dans les conditions enrichies en hydrogène comme méthodes potentielles pour améliorer la combustion du biogaz.

1.3 Modélisation de la combustion numérique.

La modélisation de la combustion numérique représente une aide importante dans le développement de moteurs de pointe à efficacité accrue et à la réduction des émissions de gaz à effet de serre. En ce sens, le développement des modèles de cinétiques chimiques de combustion précis couplés à des modèles de calcul de la dynamique des

fluides tout aussi est essentiel. Dans le contexte des progrès récents dans les domaines numériques, la dynamique des fluides numérique (CFD) est devenue l'un des outils les plus puissants et les plus efficaces pour obtenir et analyser des données détaillées sur les débits en cas de phénomène de combustion. Cependant, le développement d'un code CFD adéquat et précis pour la simulation de combustion numérique reste une tâche ardue. La principale raison à cela est que la combustion est un sujet multidisciplinaire qui consiste en un grand nombre de phénomènes très complexes et interactions. Par conséquent, l'élaboration d'un nouveau code CFD reproduisant le comportement réel d'une combustion de carburant devrait être assortie des deux exigences principales suivantes :

- Il devrait modéliser les processus complexes associés à la combustion avec une précision suffisante.
- La simulation devrait être possible avec des ressources de stockage informatiques acceptables et dans les délais de calcul raisonnablement courts.

1.3.1 Le rôle de la cinétique chimique complexe dans la combustion.

Les concepts de la cinétique chimique font partie intégrante de la simulation numérique de la combustion. Afin de développer la prochaine génération de chambre de combustion tout en contrôlant les émissions de polluants associées, des informations telles que l'allumage, l'efficacité de la combustion, la stabilisation de la flamme et la formation de produits de combustion sont extrêmement importantes. La précision de la simulation dépend fortement de la taille du mécanisme de cinétique chimique retenu dans les modèles informatiques. En termes de flux réactifs, l'importance de la cinétique chimique a été reconnue ces dernières années. Ceci est soutenu par les efforts accrus qui existent aujourd'hui pour incorporer des mécanismes réactionnels dans les logiciels de modélisations de la combustion. Dans une combustion turbulente, les calculs d'écoulement réactif utilisant le mécanisme de cinétique détaillé est essentiel à la compréhension de l'interaction entre la structure d'écoulement et la flamme.

1.3.2 Importance des mécanismes détaillés.

L'enjeu majeur en matière de cinétique de combustion consiste à développer des mécanismes détaillés permettant de décrire des carburants très complexes. Etant donné que la tâche d'inclure tous les composés possibles pour un carburant commercial rendrait la tâche trop complexe et nécessiterait des ressources qui ne sont pas disponible actuellement, des méthodes alternatives pour développer des mécanismes de cinétiques chimiques détaillés et réels sont utilisées. Ces mécanismes contiennent des composants ayant des propriétés physique et cinétique similaires à celles d'un carburant commercial. En outre, ces mécanismes complets sont optimisés et validés en utilisant des données précises sur la concentration des espèces, collectées par échantillonnage de gaz et d'investigation à l'aide de techniques analytiques (par exemple, Spectroscopie de masse et chromatographie en phase gazeuse).

Plusieurs mécanismes de cinétiques chimiques détaillés ont été développés pour une large gamme de carburants [20, 24, 25, 27]. Cependant, la plupart de ces mécanismes ont des restrictions quant à leur applicabilité à certaines conditions de fonctionnement particulières, c'est-à-dire qu'ils ne sont valables que pour des plages spécifiques de température, de pression et de fraction de mélange. Ce fait implique que leur utilisation en dehors de limites pourrait conduire à des résultats erronés. Il existe des cas où même des mécanismes complets ayant des caractéristiques similaires pourraient conduire à des résultats qualitativement différents en raison d'un léger changement de constante sur le taux de réaction élémentaire. Plus précisément, en mettant à jour un mécanisme de réaction existant, le taux de certaines réactions essentielles pour un phénomènes spécifique pourraient être involontairement modifié, entraînant des résultats inattendus. D'autre part, l'utilisation de mécanismes très simplifiés peut également poser certains problèmes. L'un d'eux est lié à la précision du mécanisme réduit dérivés du mécanisme de cinétique chimique détaillé initial.

Pour résumer, l'importance de développer des mécanismes détaillés et complets provient de la relation suivante : la fidélité de toute étape ultérieure de réduction du mécanisme dépend de la fidélité du mécanisme de cinétique détaillé. Cependant, le

développement de mécanismes détaillés qui sont complets est une tâche très difficile en raison de deux principaux aspects. Premièrement, il peut être extrêmement difficile, voire impossible, pour des combustions plus complexes, d'identifier et rassembler toutes les espèces et réactions élémentaires du mécanisme détaillé. Deuxièmement, la détermination des constantes de vitesse correspondant à chaque réaction identifiée est une tâche compliquée et exigeante, que ce soit expérimentalement ou numériquement [59]. L'intégralité d'un mécanisme réactionnel ne peut être obtenue que s'il existe une procédure systématique d'identification de l'ensemble des espèces et réactions de ce mécanisme particulier. Une telle procédure n'existe pas pour le moment, les scientifiques de la combustion s'appuient actuellement sur le développement de mécanismes de cinétiques chimiques aussi complets que possible et capables de reproduire les phénomènes de combustion en détail.

Cependant, il est difficile d'extraire des explications des phénomènes de combustion numérique utilisant le mécanisme détaillé. Il est donc nécessaire de simuler la combustion numérique avec le mécanisme simplifié. L'un des avantages de travailler avec un modèle simplifié capable de générer des solutions similaires à celle du modèle détaillé est la facilitation de pouvoir traiter des résultats de la simulation.

Plusieurs approches majeures peuvent être adoptées pour aborder la simulation numérique des flammes turbulentes (prémélangées et non-prémélangées) utilisant des mécanismes de cinétiques chimiques complexes, telles que la réduction de dimension qui concerne le nombre d'espèces et de réactions.

1.4 Méthodes de réduction de mécanismes de cinétiques chimiques.

Dans la littérature nous avons recensé quelques méthodes de réduction de cinétique chimique détaillé :

1.4.1 Calcul des flux atomiques et analyse des chemins réactionnels

L'analyse des flux atomiques, circulant entre les différentes espèces du schéma cinétique détaillé, permet d'apprécier l'importance des réactions élémentaires corres-

pondantes. Lorsque celles-ci ont une influence mineure sur le processus de combustion, elles sont écartées du système, et par là même les espèces y participant [60] .

Revel et al. ont initialement développé cette méthode pour simplifier un mécanisme détaillé de combustion du méthane. Elle consiste à calculer les flux atomiques des 4 éléments C, H, O et N transitant entre toutes les espèces du système réactionnel selon les chemins réactionnels empruntés.

La comparaison des diagrammes de flux inter-espèces (molécules stables et radicaux) permet de déduire les voies réactionnelles importantes pour une espèce et pour des conditions paramétriques données (temps de séjour, pression, température d'entrée et richesse du mélange). Les espèces non-indispensables, pour simuler correctement le processus de combustion sont identifiées avant de construire un schéma simplifié. Les auteurs précisent que cette opération doit être répétée pour un grand nombre de temps de séjour : en effet, une espèce peut être négligeable à une position P_1 , puis devenir importante en une position P_2 . Il faut donc regarder l'influence de cette espèce pour l'ensemble des conditions paramétriques avant de l'écartier définitivement du mécanisme.

Comme illustration, un schéma de principe correspondant au diagramme de flux entre 2 espèces X et Y est présenté sur la figure 1.18.

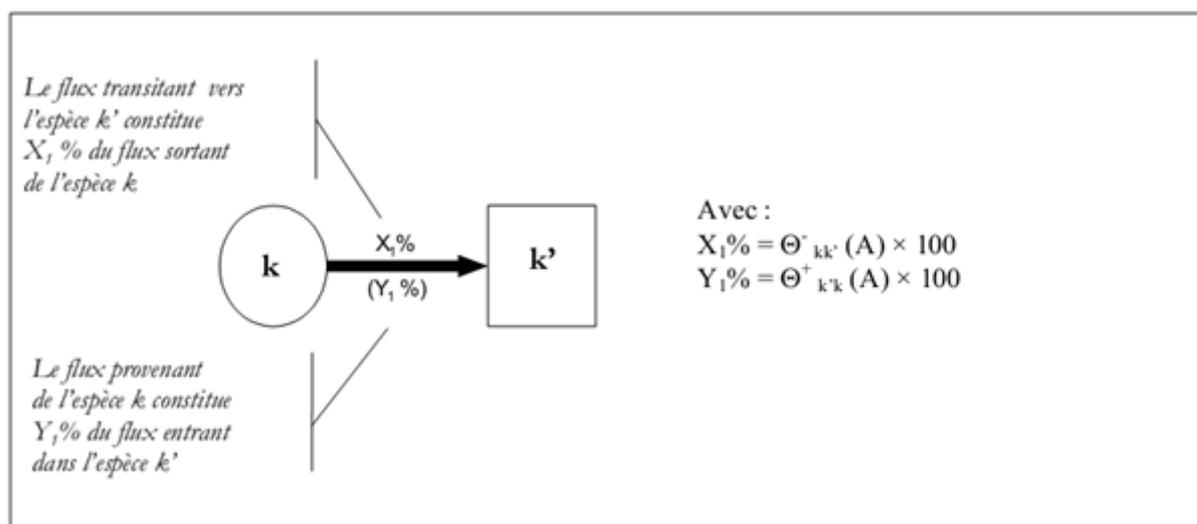


FIGURE 1.8 – Schéma de synthèse d'un diagramme de flux atomiques entre les espèces k et k' [29]

-L'analyse des flux atomiques a été mise en place sur un ensemble de conditions paramétriques initiales afin d'aboutir à un mécanisme squelettique ou pseudo-détaillé. Frouzakis et Boulochos ont utilisé cette méthode pour réduire un mécanisme détaillé CH₄/air comportant 488 réactions irréversibles et 53 espèces à 188 réactions et 27 espèces [31]. Les erreurs relatives obtenues sur l'évolution de la composition du système réactif sont inférieures à 2% par rapport au schéma initial, et le gain en temps de calcul est voisin de 2.

Récemment, Lepage, s'appuyant sur le même principe, a lancé les bases d'une automatisation de la simplification des mécanismes selon cette méthode en l'appliquant à la combustion du gaz naturel et du n-décane [61]. Pour ces deux exemples, un mécanisme squelettique, dans lequel environ 30% des espèces et 65% des réactions ont été éliminées.

Les écarts relatifs rencontrés, par rapport au modèle initial, sur les différents profils d'espèces sont inférieurs à 5% et le temps de calcul nécessaire est 2 à 4 fois plus faible.

Bien qu'intéressante, cette technique nous semble insuffisamment performante au niveau de la rapidité des calculs. Dans chacun des exemples cités, les différents auteurs ont utilisé cette méthode comme l'étape initiale de simplification. Revel c'est appuyé sur ce type de modèle simplifié, pour établir un mécanisme global du méthane à 6 étapes (calcul environ 10 fois plus rapide) [62, 63]. L'utilisation des techniques de réduction complémentaires s'avère nécessaire pour accroître le taux de réduction ainsi que le gain en temps de calcul, sans faire chuter les capacités prédictives du mécanisme : l'analyse de sensibilité en est une.

1.4.2 L'analyse de sensibilité

L'analyse de sensibilité est l'outil mathématique utilisé pour quantifier l'importance des réactions ou des espèces les unes par rapport aux autres [31, 32]. Elle permet d'apprécier la réponse d'un mécanisme suite à une perturbation provoquée sur l'un des paramètres du système (variation sur la constante de vitesse k , par exemple). La quantification de cette réponse permet de déterminer les réactions « sensibles » ayant

une influence sur les profils d'espèces ou la vitesse nette des espèces.

L'analyse de sensibilité permet de diminuer la taille d'un mécanisme par élimination des réactions dont le coefficient de sensibilité normalisé est faible. Le modèle réduit devant être applicable sur un domaine paramétrique étendu, il faudra donc évaluer la matrice de sensibilité pour diverses conditions paramétriques de pression, température, richesse, temps de séjour [64]. Ces mêmes auteurs s'accordent à dire que ce procédé est lent et inefficace (peu de réactions sont éliminées). Il faut recourir à d'autres méthodes pour obtenir une réduction plus substantielle.

Grâce à cette méthode, simple à mettre en place et d'utilisation facile, de nombreuses équipes de recherche sont parvenues à réduire divers mécanismes (différents en taille, en type de combustibles étudiés, en domaine cinétique abordé : tableau 1.5).

TABLE 1.5 – Résultats de réduction de mécanismes par l'analyse des composantes principales [29].

Autres	Schéma initial	Schéma final	précision $\Delta C/C$
Vajda et al. (1985)	HCHO+CO 25 réactions 12 espèces	13 réactions 12 espèces	1/%
Turanyi et al. (1989)	Propane(pyrolyse) 66 réactions 14 espèces	23 réactions 14 espèces	$\sim 1\%$ (à 3% de conversion de C_3H_8)
Turanyi (1990)	Butane (pyrolyse) 60 réactions 22 espèces	49 réactions 22 espèces	de 1 à 7% (suivant l'espèce considérée)
Vajda et al. (1990)	H2/O2 38 réactions 9 espèces	21/15 réactions 9 espèces	$\sim 5\%$
Tomlin et al. (1992)	H2/O2 47 réactions 9 espèces	14/17 réactions 9 espèces	1%
Tomlin et al. (1995)	Propane (pyrolyse) 422 réactions 48 espèces	122/50 réactions 19 espèces	1 à 5 %
Vlachos (1996)	H2/Air 40 réactions 8 espèces	de 6 à 26 réactions de 7 à 8 espèces	0.3 à 3 %
Brown et al. (1997)	CH4 235/177 réactions 52/ 13 espèces	200/158 réactions 48/30 espèces	$\sim 5\%$

1.4.3 La méthode du Re-pro-Modelling

Turányi, présente la méthode du repro-modelling comme une paramétrisation du pro-

cessus chimique sous la forme d'équations polynomiales multi-variables explicites. Elle a surtout été mise en œuvre dans le domaine de la pollution atmosphérique, mais peu en revanche dans celui de la combustion [65, 66].

1.4.3.1 Principe de la méthode

A partir de nombreuses simulations avec le modèle de cinétique chimique détaillé, une base d'informations sur la concentration des espèces et sur les vitesses de réactions est construite. Ces données peuvent ensuite être représentées par un polynôme multivariés d'ordre supérieur. Les coefficients de ce polynôme permettent ainsi une évaluation beaucoup plus rapide des grandeurs à reproduire qu'avec le modèle détaillé. Par contre, une condition doit être respectée. Turányi souligne, en effet, que la mise en place d'un repro-modèle ne peut s'effectuer sans une sélection préalable des espèces importantes dans les mécanismes détaillé [30]. En général, la technique du repro-modelling permet une représentation cinétique correcte du système.

Les simulations sont parfois jusqu'à 10 fois plus rapides que celles effectuées avec le modèle complet. De plus, les polynômes utilisés peuvent évaluer les variables avec une précision de l'ordre de 1 %. Cependant, les informations paramétrées sont relatives à un domaine de conditions bien limité (température, pression, temps de réaction...), alors que dans la plupart des cas, celui-ci est beaucoup plus vaste. La prise en compte d'un domaine beaucoup plus vaste supposerait l'accumulation d'une quantité de résultats nettement plus importante avec le mécanisme détaillé (données à introduire dans le polynôme).

L'opération de « fittage » de plus en plus complexe devient alors très pénalisante en temps et la robustesse de l'algorithme diminue. Une autre solution consisterait à utiliser autant de polynômes qu'il y a de domaines expérimentaux à représenter ou de sous-modèles dans le mécanisme détaillé initial. Dans les deux cas, le nombre des données à stocker devient très rapidement gigantesque faisant « exploser » la taille du fichier de stockage.

L'utilisation de la méthode du repro-modelling pour différentes études, rassemblées dans le tableau 1.6, laisse apparaître une bonne précision sur les profils de concentration

calculée. Le gain en temps de calcul peut même être très important. Cependant, il faut souligner que le nombre de variables et le domaine paramétrique est limité. De plus, la plupart des auteurs dont Lowe, précise bien que cette technique du repro-modelling ne devient intéressante que si elle est utilisée en aval sur un système simplifié au préalable par d'autres méthodes.

TABLE 1.6 – Résultats de la réduction de mécanismes par la méthode du Repro-modelling [29].

Auteurs	Schéma initial	Nombre de variables	Gain en temps de calcul	précision $\Delta C/C^*$
Turányi (1994)	Chimie oscillante 80 (ou 42) réactions 25 (ou 22) espèces	4 à 10 8	? 60	0.3 à 2% ?
Lowe et al. (1998)	Chimie troposphérique 159 réactions 29 espèces	10	25	1%
Clifford et al. (1998)	H ₂ /O ₂ ? réactions ? espèces	2	de 3 à 1500	5%

Note a : la comparaison C (C = concentration) détaillé / C réduit pour calculer la précision sur C est soit estimée par les courbes des articles, soit donnée par les auteurs.

Selon Turányi, 13 à 15 variables semblent constituer une limite acceptable sur les mécanismes essayés, mais des études complémentaires seront nécessaires pour évaluer le potentiel réel de cette méthode dans le domaine de la combustion et sur des mécanismes plus complexes.

1.4.4 La méthode "Intrinsic Low-Dimensional Manifold" ILDM.

L'objectif de la méthode ILDM [35, 36] est de créer un modèle global (ou pseudo-global) permettant d'effectuer les calculs multi-dimensionnels de la dynamique des fluides, mais en ne conservant qu'une représentation très simplifiée de la chimie. Les seules informations requises sont : le mécanisme détaillé et le nombre de degrés de liberté N (nombre d'étapes ou dimension) du schéma réduit final.

La méthode ILDM cherche également à simplifier la multiplicité d'échelles de temps en s'appuyant sur une analyse des valeurs et vecteurs propres de la matrice Jacobienne,

qui permet l'identification des temps caractéristiques et des processus chimiques lents ou rapides. Dans l'espace des phases, l'évolution de la cinétique chimique (analyse des vecteurs propres) tend rapidement vers une limite nommée variété lente ou manifold, qui définit donc un sous-ensemble pouvant être utilisé pour construire un schéma réduit. Seuls sont considérés les temps caractéristiques les moins rapides, puisque les perturbations associées aux temps caractéristiques rapides sont relaxées rapidement par la chimie vers le manifold correspondant à l'évolution lente du système vers le point d'équilibre. L'identification de ce manifold, attracteur des différentes trajectoires du modèle détaillé est nécessaire. Le travail consiste donc à reproduire les mouvements du système le long du manifold à partir des différentes caractéristiques de ce dernier (vitesse de formation des espèces, composition chimique, température, ...). Ces caractéristiques qui paramétrisent les variables sont conservées dans une table représentative du schéma réduit final. Ainsi, les autres variables correspondant aux échelles de temps rapides, sont « éliminées » du schéma réactionnel. Le schéma réduit qui en résulte comporte N étapes, fonction des coordonnées associées avec les N degrés de liberté.

1.4.5 Le méthode « Rate-Controlled constrained-Equilibrium » (RCCE).

RCCE reste parmi les méthodes prometteuses développées jusqu'à présent, elle est particulièrement attrayante en raison de ces fondements dans la thermodynamique classique. Cette méthode est à l'origine introduite par Keck et Gillespie [67] puis développées et appliquées par Metghalchi et al. [68, 69, 70]. Dans RCCE, l'évolution d'un système réactif est décrite par un nombre relativement petit de taux de réactions qui imposent des contraintes à l'évolution lente sur le système dynamique. Les réactions rapides sont supposées relaxer le système aux contraintes associées des temps caractéristiques rapides. L'évolution de la dynamique des contraintes de la cinétique chimique est déterminée uniquement par la cinétique. Les espèces non-contraintes sont supposées être temporairement à l'équilibre. On dit donc que ces espèces sont dans un état d'équilibre de contrainte. Donc, dans RCCE, un système d'équilibre se détend à son état d'équilibre final par le biais d'une séquence d'états de RCCE, déterminée en maximisant l'entropie sous réserve de la valeur instantanée de contraintes. Il existe deux

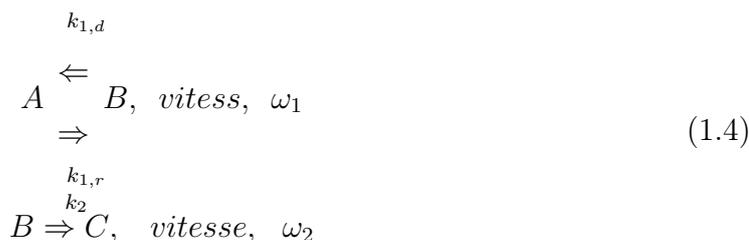
formes de formulation de RCCE : le potentiel de contrainte et la contrainte. Le premier implique les taux d'équations de potentiels de contrainte, donc la solution détermine entièrement l'état du système [71, 72]. Dans ce cas, des équations de taux sont résolues pour les contraintes. Cette forme nécessite des informations supplémentaires pour les calculs des contraintes d'équilibres. Les calculs sous forme de contrainte de RCCE sont traités à l'aide des codes CES de la NASA [73] et STANJAN [74], et il est montré que ces codes entraînent des temps de calculs importants. Cette méthode est garantie pour déterminer l'état d'équilibre chimique pour tous les problèmes bien posés, contraints et non-contraints. Dans les deux formes de RCCE, l'intégration temporelle des taux d'équations est effectuée en utilisant le solveur DVODE pour la résolution de la raideur des équations différentielles ordinaires [75].

1.4.6 Approximation de l'Etat Quasi-Stationnaire : AEQS.

La méthode de l'approximation de l'état Quasi-stationnaire a permis d'obtenir, avant même l'apparition des ordinateurs, des solutions analytiques approchées des systèmes d'équations différentielles [76]. Cette technique évalue la dispersion des temps caractéristiques des espèces du système. Pour cela, elle détermine les espèces (intermédiaires réactionnels) qui réagissent sur une très courte échelle de temps, donc celles qui sont les plus réactives, et dont la fraction molaire X_k est très faible. On dit alors que la concentration de ces intermédiaires a atteint un état stationnaire par rapport aux autres composés du système. Autrement dit, l'accumulation d'une espèce stationnaire k , étant à priori une espèce rapidement consommée, est très faible dans le milieu réactionnel. La vitesse de formation f_k^f de cette espèce est équivalente à sa vitesse de destruction f_k^d , conduisant à une vitesse nette f_k^{net} négligeable devant ces deux vitesses. L'intérêt de l'AEQS est de réduire la raideur inhérente à la multiplicité d'échelles de temps caractéristiques. Ainsi, le système différentiel initial est remplacé par une combinaison d'équations différentielles, pour le calcul des concentrations des espèces ayant un temps caractéristique plutôt long (espèces différentielles), et d'expressions algébriques implicites pour celles réagissant sur une échelle de temps plutôt courte (espèces en état quasi stationnaires).

1.4.7 Approximation de l'Équilibre Partiel : AEP

Cette méthode, complémentaire de la technique précédente, est surtout utilisée pour simplifier des expressions algébriques issues de l'AEQS. Elle est basée sur l'existence d'un équilibre entre les vitesses de réaction dans le sens direct et inverse de certaines réactions réversibles très rapides, dites en équilibre partiel. Exemple tiré de Ferrendier pour deux réactions (dont une réversible) et trois espèces [78] :



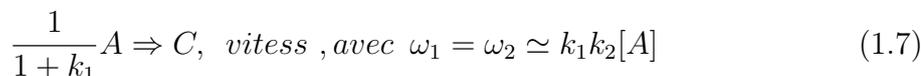
On suppose que les espèces A et B sont en équilibre et que $k_{1,r} \gg k_{1,d}$. On peut écrire : $k_1 = \frac{[B]}{[A]} = \frac{k_{1,d}}{k_{1,r}}$. Ainsi, les vitesses de formation et destruction de l'intermédiaire B vers le réactif A sont beaucoup plus élevée que la vitesse de formation du produit C à partir de B . l'hypothèse d'un équilibre sens direct/ sens inverse dans la première réaction permet d'éliminer $[B]$ et la vitesse ω_1 :

$$\begin{aligned}
 k_{1,d}[A] - k_{1,r}[B] &\simeq 0 \\
 \frac{d[B]}{dt} &= -\frac{d[A]}{dt} - \omega_2 \\
 \frac{d[C]}{dt} &= \omega_2
 \end{aligned} \tag{1.5}$$

On peut écrire cette série de trois équations sous la forme :

$$\begin{aligned}
 [B] &\simeq k_1[A] \\
 (1 + k_1)\frac{d[A]}{dt} &\simeq -\omega_2 \\
 \frac{d[C]}{dt} &= \omega_2
 \end{aligned} \tag{1.6}$$

Ceci correspond à la loi d'évolution d'un schéma cinétique réduit à deux espèces et une réaction, soit :



L'utilisation de l'AEP est moins fréquente car elle entraîne une perte de précision

plus importante que dans le cas de l'AEQS. Toutefois, pour certaines estimations de concentration en entrée (méthode d'itération interne), elle est souvent suffisante [79].

1.4.8 La méthode de sélection liée aux temps caractéristiques des espèces.

Une autre technique permettant de déterminer ce nombre d'espèces stationnaires, est l'analyse de la matrice Jacobienne et l'utilisation des temps caractéristiques de chacune des espèces τ_k [80, 81]. Le temps caractéristique d'une espèce k , grossièrement égal à l'inverse de l'élément diagonal λ_k de la matrice Jacobienne pour cette espèce, peut s'écrire selon : $\tau_k \equiv \left\| -\frac{1}{\lambda_k} \right\|$.

Cette méthode de sélection apparaît dans les programmes KINALC ou CSP91 [82, 83]. Si $\tau_k < \tau_{cut}$, (τ_{cut} , temps caractéristique de coupure spécifié par l'utilisateur), la $k^{ième}$ espèce peut être considérée comme étant stationnaire. D'après Massias, cette procédure est peu précise et dépend fortement du choix arbitraire de la valeur de coupure [44, 45].

1.4.9 La méthode CSP (Computational Singular Perturbation)

Dès 1985, S. H. Lam a proposé, en collaboration avec D. A. Goussis, une nouvelle méthode de réduction de mécanisme : Computational Singular Perturbation (CSP) [44, 45, 46, 47]. Conçue à l'origine pour diminuer la raideur des systèmes à résoudre, son utilisation ne nécessite pas de compétences particulières en cinétique chimique. L'algorithme identifie numériquement les espèces en état stationnaire (ou « radicaux » selon la terminologie des auteurs) et les réactions rapides.

Parmi, les études menées sur différents mécanismes, les plus significatives récapitulées dans le tableau 1.7, permettent d'évaluer les capacités de réduction de la méthode CSP (quand les informations sont fournies). D'un point de vue général, les résultats semblent satisfaisants : taux de réduction élevés, gains en temps améliorés et bonne précision sur les concentrations calculées (< 5%).

TABLE 1.7 – Résultats de la réduction de mécanisme par la méthode CSP [29]

Auteurs	Schéma initial	Schéma final (M = Mécanisme)	Schéma pseudo- global	Précision $\Delta C/C^*$	Gain en temps de calcul
Lam et al. (1988) Avec schéma de peters et Williams (1987)	H2/O2/(CH4) 38 réactions (irrev) ~ 15espèces	H2/O2 10 réactions (irrev) 7 espèces	7 réactions 7 espèces	?	?
Trevino et Soloro (1991)	H2/O2/CO 58 réactions	2 régimes 10/8 réactions	2 régimes 5/4 réactions	?	?
Trevino et Mendéz (1992)	11 espèces CH4/O2 231 réactions ?	10/9 espèces	8/7 espèces 6 réactions 9 espèces	jusqu'à ~50 %	?
Fotache et al. (1997)	CH4 177 réactions (rev) 32 espèces	M1,M2,M3,M4 29/34/51/64 réactions 17/18/20/22 espèces		Jusqu'à ~10 %	2 à 3
Massias et al. (1999)	CH4/H2 279/71 réactions 49/18 espèces		10 (ou 7)/ 5 réactions 15/ 8 espèces	~5 %	?
Frotzakis et Boulochos (2000)	CH4/Air 488 réactions 53 espèces	CH4/Air 95 réactions 27 espèces	7 réactions 11 espèces	~2 %	<2
Diamantis et al. (2000)	CH4/Air 249 réactions 49 espèces	CH4/Air 52 réactions 17 espèces	10 réactions 15 espèces	~5 %	?
Lu et al. (2002)	CH4/O2 GRI Mesh 1.2 H2/O2 9 espèces ? réactions		10 réactions 14 espèces 4 réactions 6 espèces	~2 %	?

Note a : la comparaison C (C = concentration) détaillé / C réduit pour calculer la précision sur C est soit estimée par les courbes des articles, soit donnée par les auteurs.

Néanmoins, la difficulté majeure de cette procédure de réduction, soulignée par différents auteurs, reste malgré tout le « bon » choix des espèces EQS. Cette sélection peut effectivement changer au cours de l'évolution du système réactif, pour un même mécanisme, si les conditions paramétriques couvrent un domaine très étendu. Dans la plupart des cas, les solutions possibles ne peuvent s'appuyer que sur des notions d'intuition « éclairée » ou sur les connaissances cinétiques de l'utilisateur.

Cette méthode, qui fait l'objet de notre étude sera détaillée dans le chapitre 2 et les résultats seront discutés dans le chapitre 3.

1.5 Conclusion partielle.

Dans ce chapitre, une attention a été portée sur la situation énergétique et la simulation de la combustion numérique du biogaz au Cameroun. Cette simulation implique le mécanisme de cinétique chimique pouvant décrire informatiquement ce biogaz. La littérature nous montre les différentes difficultés rencontrées lors de la simulation numérique d'une combustion turbulente impliquant une cinétique chimique détaillée.

L'«inflation» de la taille des mécanismes qui accompagne la compréhension de la cinétique chimique rend les simulations gourmandes en temps de calcul. L'intérêt de la réduction est d'essayer de contourner ce problème, en diminuant la taille du mécanisme, tout en préservant les qualités prédictives du modèle initial.

Ainsi que nous l'avons vu, la démarche de réduction dépend fortement des objectifs de précision et de rapidité souhaités. Si l'on vise un mécanisme réduit rapide, ne reproduisant que quelques-unes des caractéristiques du modèle initial, la démarche mathématique (Repro-modelling ou ILDM) qui conduit à un mécanisme réduit global, semble bien adaptée. Les temps de calcul observés sont effectivement de 15 (systèmes relativement simples) à 20 (systèmes très simples) fois plus faibles. Cependant, l'inconvénient majeur de cette approche est le faible nombre de variables représentées.

Un modèle pseudo-détaillé, obtenu après l'élimination des espèces et des réactions rapides (méthode des flux atomiques, de l'analyse de sensibilité ou ACP), sera plus apte à rendre compte de l'évolution de la majeure partie des espèces (50% à 75%). Les gains en temps de calcul avec ces mécanismes allégés, qui peuvent atteindre un facteur 10, sont généralement compris entre 3 et 5. Cette amélioration, honorable, est insuffisante pour espérer intégrer cette description de la chimie dans les codes de calculs industriels déjà fort complexes.

Pour un cinéticien, la réduction d'un mécanisme n'offre d'intérêt que si le schéma réduit obtenu conserve des capacités prédictives. Pour ces raisons, le développement d'un schéma pseudo-global, selon la méthode "Computational Singular Perturbation" (CSP), semble être un compromis honnête entre représentativité de la chimie et rapidité des calculs. Cependant, cette opération n'est efficace que sur un mécanisme débarrassé

au préalable de toutes ses réactions et espèces rapides.

La stratégie adoptée dans cette étude est la suivante : élimination des réactions et espèces rapides par la méthode CSP. A l'issue de cette simplification, un mécanisme squelettique est obtenu. Cette approche qui s'appuie sur la démarche chimico-mathématique, présente l'avantage de représenter correctement la composition des espèces majoritaires, avec des temps de calcul très réduits. Le mécanisme réduit par cette méthode est appliqué à la simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente du biogaz, dans le code industriel CFD OpenFoam avec pour solver ReactingFoam.

LES OUTILS THÉORIQUES ET NUMÉRIQUES POUR LA COMBUSTION DU
BIOGAZ À L'AIDE D'UNE RÉDUCTION DE LA CINÉTIQUE CHIMIQUE DE TYPE
"COMPUTATIONAL SINGULAR PERTURBATION".

2.1 Introduction

D'une manière générale la combustion est un phénomène complexe, elle implique la physique (thermodynamique) et la chimie (mécanisme de cinétique chimique). Ce couplage rend le temps de calcul de la simulation numérique des écoulements réactifs de plus en plus long. Ce temps de calcul est caractérisé par la multiplicité des temps caractéristiques liés aux différentes espèces chimiques contenues dans le mécanisme détaillé. L'une des voies explorées pour résoudre ce problème est de réduire les schémas de cinétiques chimiques. Cette opération tend à réduire à la fois le nombre d'espèces chimiques ainsi la raideur du système.

Dans ce chapitre notre attention est portée sur la méthode de réduction de la cinétique chimique de type "Computational Singular Perturbation" (CSP), où nous développons une approche qui est basée sur l'analyse des indices d'importances des modes sur l'évolution des espèces et le degré de participation des réactions élémentaires.

Les programmes utilisés au cours de ce travail pour simuler le processus de combustion du biogaz et effectuer divers calculs cinétiques, font partie du package **Chemkin-II** [84]. Il a pour but de faciliter la formation, la résolution et l'interprétation des problèmes impliquant une cinétique chimique en phase gazeuse. Il fournit un outil flexible et puissant pour incorporer une cinétique chimique complexe dans des simulations de

la dynamique des fluides. **Chemkin** comprend deux composants logiciels majeurs : un interpréteur et une bibliothèque de sous-programmes en phase gazeuse. L'interpréteur est un programme qui lit une description symbolique des réactions chimiques élémentaires spécifiées par l'utilisateur. Ces programmes requièrent en entrée : un mécanisme cinétique (**Chem.inp**), une base de données thermodynamiques (**Therm.dat**). Nous avons effectué les simulations dans les conditions du réacteur parfaitement agité grâce au programme **PSR** [85]. La sortie de l'interpréteur est un fichier de données qui forme un lien vers la phase gazeuse des sous-programmes de la bibliothèque. Cette bibliothèque est une collection d'environ 100 sous-routines **Fortran** hautement modulaires qui peut être appelé à renvoyer des informations sur les équations d'état, des propriétés thermodynamiques et les taux de réactions chimiques. Dans ce travail, deux applications du mécanisme réduit par notre approche CSP sont faites :

(a) La simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente de type DRL-Flame A du laboratoire Sandia [49, 86].

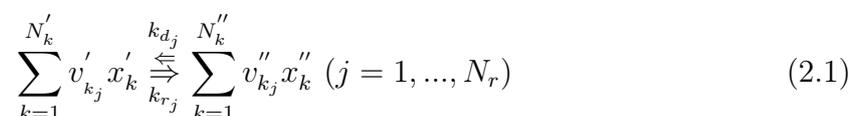
(b) La simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente du biogaz.

Ces deux applications sont faites dans le logiciel industriel CFD OpenFoam utilisant le solveur ReactingFoam.

2.2 La théorie de la réduction de la cinétique chimique de type "Computational Singular Perturbation".

2.2.1 Généralités sur le mécanisme réactionnel

Un mécanisme cinétique peut être représenté par un ensemble de N_r réactions élémentaires réversibles ou non contenant au total N_k espèces chimiques (N'_k dans le membre de gauche et N''_k dans le membre de droite). Il est possible de représenter ces réactions sous la forme suivante :



avec v'_{k_j} (ou v''_{k_j}) le coefficient stœchiométrique de la $k^{ième}$ espèce dans la réaction j et x'_k (ou x''_k) symbole d'une espèce chimique k. La vitesse nette de la réaction j (q_j) est définie par l'équation (2.2) :

$$q_j = [k_{d_j} \cdot \prod_{k=1}^{N'_k} [x'_k]^{v'_{k_j}} - k_{r_j} \cdot \prod_{k=1}^{N''_k} [x''_k]^{v''_{k_j}}] \quad (2.2)$$

Où $[x_k]$ est la concentration molaire de la $k^{ième}$ espèce, k_{d_j} et k_{r_j} sont respectivement les constantes de vitesse directe et inverse de la $j^{ième}$ réaction.

Pour les réactions de dissociation ou de recombinaison (exemple : $R + X + M = RX + M$) nécessitant l'intervention d'un partenaire de collision ou « troisième corps » (M), l'équation (2.2) devient :

$$q_j = \left(\sum_{k=1}^{N_k} (\alpha_{k_j}) \cdot [x_k] \right) \cdot [k_{d_j} \prod_{k=1}^{N'_k} [x'_k]^{v'_{k_j}} - k_{r_j} \cdot \prod_{k=1}^{N''_k} [x''_k]^{v''_{k_j}}] \quad (2.3)$$

Les coefficients α_{k_j} sont utilisés pour spécifier l'efficacité de collision de la $k^{ième}$ espèce dans la réaction j. La constante de vitesse directe k_{d_j} d'une réaction j est calculée par la loi d'Arrhenius généralisée :

$$k_{d_j} = A_j \cdot T^n \cdot \exp\left(-\frac{E_{a_j}}{R \cdot T}\right) \quad (2.4)$$

avec : A_j le facteur pré-exponentiel de la réaction j, n l'exposant sur la température, E_{a_j} l'énergie d'activation de la réaction j et R constante des gaz parfaits (dont les unités dépendent de celles des grandeurs thermodynamiques utilisées).

2.2.2 Fichier de données thermodynamiques : Therm.dat

Chemkin-II possède sa propre base de données thermodynamiques [87], provenant majoritairement des tables de **JANAF** [88]. Ces données thermodynamiques sont exprimées dans le formalisme du « NASA Chemical Equilibrium Program » [89]. Elles permettent le calcul des constantes de vitesse des réactions inverses qui sont liées aux constantes de vitesse directe et aux constantes d'équilibre, soit en unité de concentra-

tions k_c , soit en unité de pression k_p .

Les propriétés thermodynamiques, chaleur spécifique C_p , enthalpie standard H^0 et entropie standard S^0 , d'une espèce i sont représentées à l'aide d'un ensemble de 14 coefficients polynomiaux a_i pour un grand domaine de température. Les sept premiers a_i coefficients permettent le calcul des grandeurs thermodynamiques entre 1000K et 3000K (ou 5000K). Les sept autres sont utilisés dans le domaine de température 300 – 1000K. La base de données contient également le nom des espèces, la nature des atomes constitutifs et le domaine de température sur lequel le polynôme a été validé.

La capacité calorifique standard à pression constante pour l'espèce k est représentée :

$$\frac{C_{pk}^0}{R} = \sum_{n=1}^5 a_{n,k} \cdot T^{(n-1)}, \quad n = \text{rang du coefficient du polynôme} \quad (2.5)$$

De cette expression, on déduit l'enthalpie standard de formation apparente de k à pression constante :

$$H_k^0 = \int_{T_0}^T C_{pk}^0 \cdot dT \quad \text{ou} \quad \frac{H_k^0}{RT} = \int_{T_0}^T \frac{C_{pk}^0}{RT} \cdot dT \quad (2.6)$$

$$\text{Soit} \quad \frac{H_k^0}{RT} = \sum_{n=1}^5 \frac{a_{n,k} \cdot T^{(n-1)}}{n} + \frac{a_{6,k}}{T} \quad (2.7)$$

L'entropie est définie de façon semblable selon :

$$S_k^0 = \int_{T_0}^T \frac{C_{pK}^0}{T} \cdot dT \quad (2.8)$$

$$\text{Soit} \quad \frac{S_k^0}{R} = a_{1,k} \cdot \ln(T) + \sum_{n=2}^5 \frac{a_{n,k} \cdot T^{(n-1)}}{n-1} + a_{7,k} \quad (2.9)$$

A partir de ces trois grandeurs (C_p^0 , H^0 , S^0), il est possible de calculer :

$$\text{La capacité calorifique standard à volume constant} : C_k^0 = C_p^0 - R \quad (2.10)$$

$$\text{L'énergie interne standard} : U_k^0 = H_k^0 - v_{k_j} \cdot RT \quad (2.11)$$

$$\text{L'énergie libre standard} : A_k^0 = U_k^0 - TS_k^0 \quad (2.12)$$

$$L'enthalpie libre standard : G_k^0 = H_k^0 - T.S_k^0 \quad (2.13)$$

La variation d'enthalpie libre standard ΔG^0 de Gibbs d'une réaction, $\Delta G_k^0 = G_{produits}^0 - G_{réactifs}^0 = -RT.ln(k_{p_j})$ permet le calcul de la constante d'équilibre k_p , et donc d'accéder à la constante inverse k_{r_j} .

2.2.3 L'interpréteur chimique : CKINTERP.F

L'interpréteur de Chemkin (**CKINTERP.F**, figure 2.1) lit le fichier d'entrée **Chem.inp**, qui contient le mécanisme et les paramètres cinétiques de chaque réaction, puis vérifie la balance atomique de chacune d'entre elles, et ouvre la base de données thermodynamiques (**Therm.dat**). Après vérification, le programme **CKINTERP.F** crée un fichier binaire, **Chem.bin**, (et son équivalent en format ASCII, **Chem.out**), contenant toutes les informations nécessaires pour les codes de calcul **PSR.F**, et **CSP**.

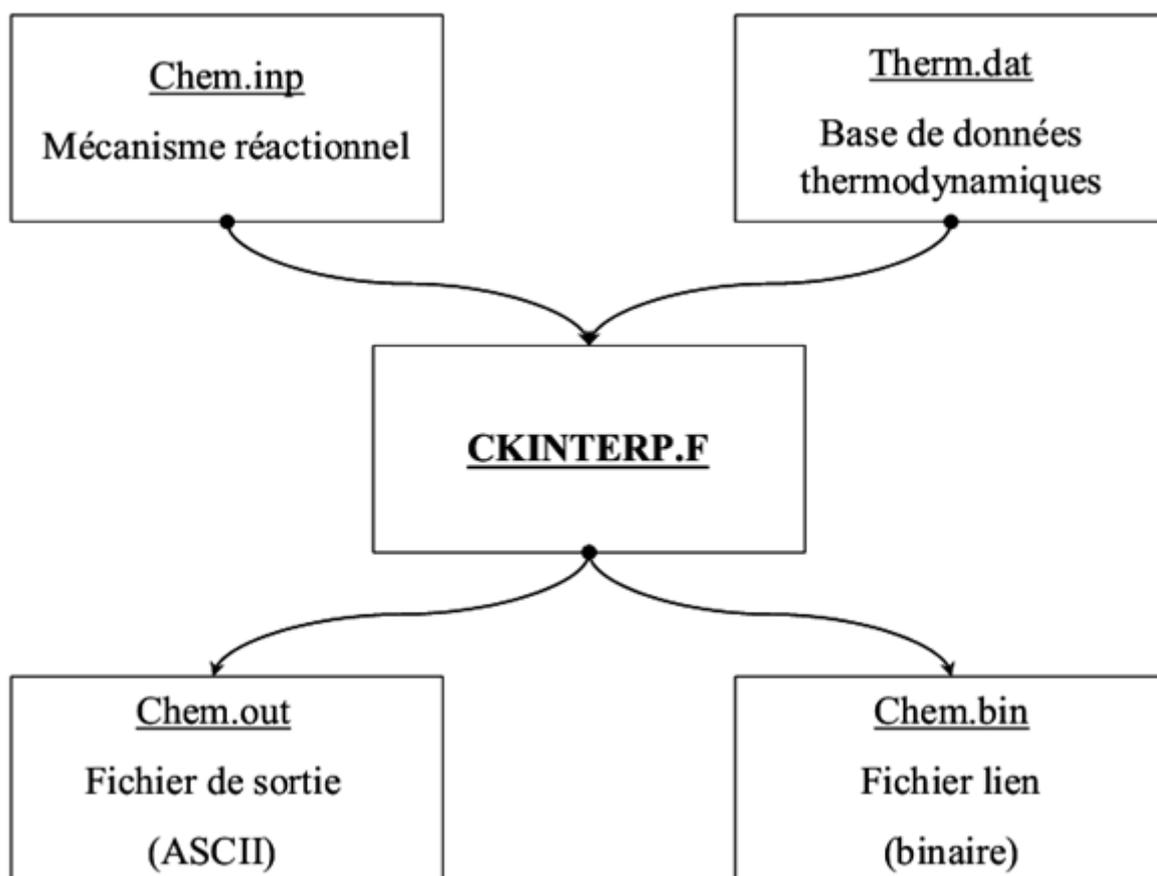


FIGURE 2.1 – Interpréteur chimique [87].

2.2.4 Le réacteur parfaitement agité : Perfectly Stirred Reactor (PSR)

2.2.7.1 Présentation générale du réacteur

Le réacteur parfaitement agité peut être schématiquement représenté par un volume thermiquement isolé ou non, dans lequel un flux massique constant de combustible et d'oxydant est introduit. L'écoulement au sein de la chambre (figure 2.2) est fortement turbulent, ce qui permet d'admettre l'uniformité de la température et de la composition à l'intérieur du réacteur. Dans ces conditions idéales, la vitesse de conversion des réactifs en produits est contrôlée uniquement par les processus chimiques, et non par les phénomènes de diffusion (transfert de masse ou de chaleur). Les vitesses de mélange sont également considérées comme infiniment rapides. De plus, pour remplir les conditions d'un réacteur parfaitement agité, on supposera qu'aucune réaction catalytique n'intervient pas au niveau des parois.

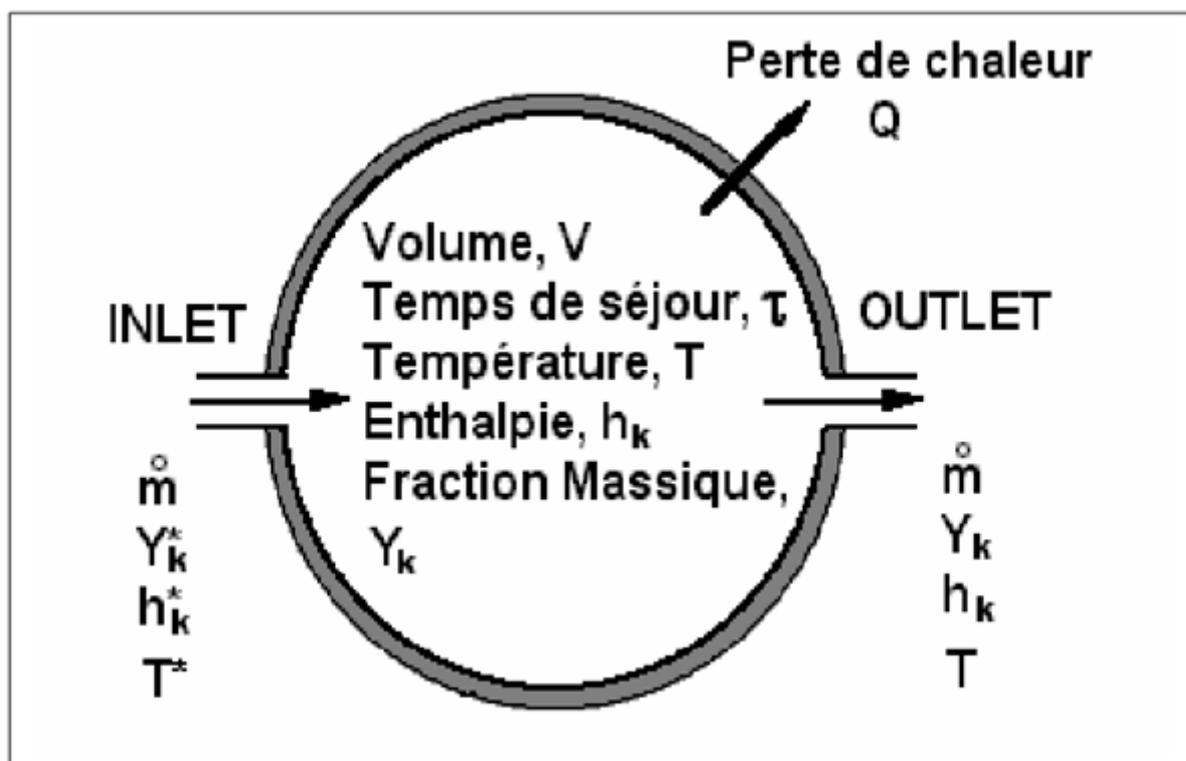


FIGURE 2.2 – Représentation schématique du réacteur PSR [87]

Le réacteur est caractérisé par son volume (V), son temps de passage (appelé «temps de séjour») moyen (τ), la température (T), une perte thermique éventuelle (Q) et les fractions massiques des espèces (Y_k). Le débit massique de gaz (\dot{m}) dans le réacteur est

constant. L'astérisque correspond aux conditions d'entrée (INLET sur la figure 2.2).

La modélisation d'un réacteur parfaitement agité est assurée par le programme **PSR** contenu dans le package CHEMKIN-II. Le code de calcul Fortran **DRVPSR.F** (figure 2.3) utilise le fichier de sortie de l'interpréteur (**Chem.bin**) par l'intermédiaire de la librairie de sous-programmes (Chemlib). Il fait également appel à un fichier de conditions initiales du modèle (**Psr.inp**), où sont définies les concentrations de départ en combustible et comburant, voire d'autres composés (H_2O , NO , N_2 , ...). Ce fichier d'entrée comprend aussi des informations sur le temps de séjour (τ) auquel est effectué le calcul, la température d'entrée du réacteur (T_e), la pression (P), la richesse du milieu (φ)...

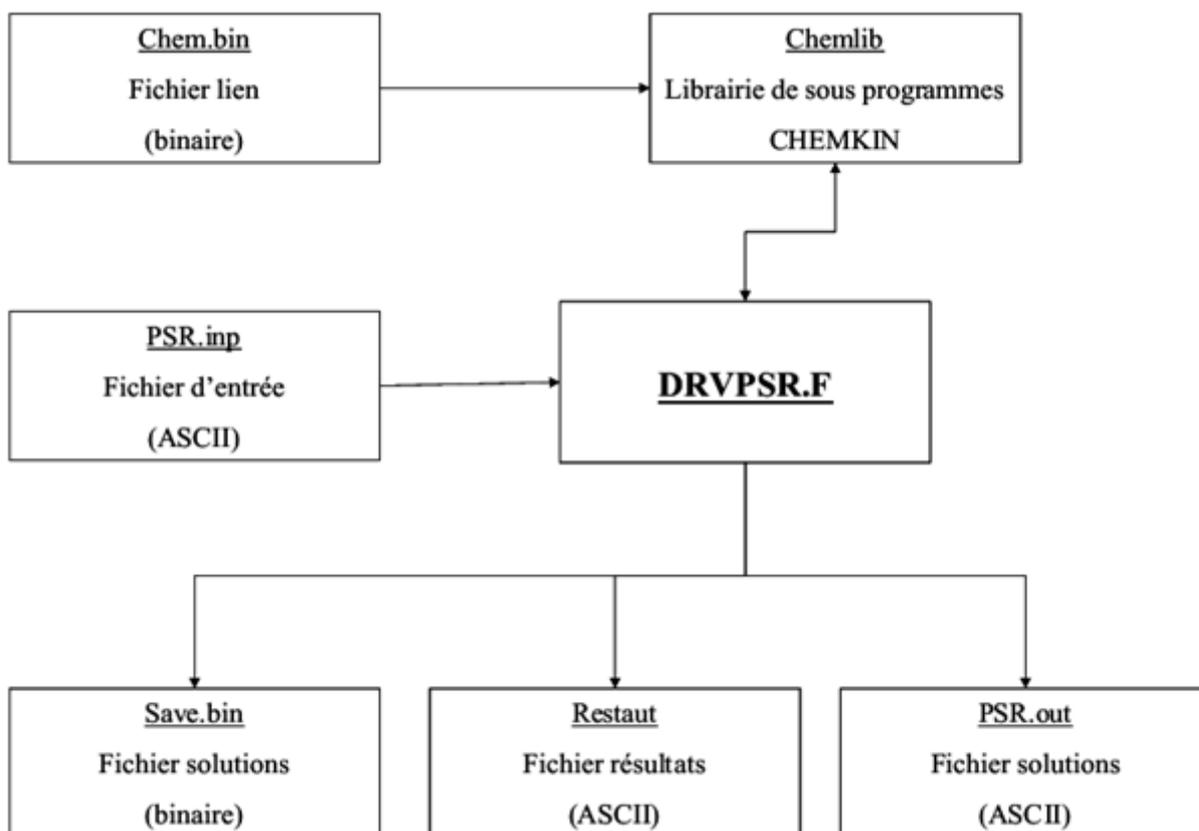


FIGURE 2.3 – Fonctionnement de PSR au sein de CHEMKIN-II [87]

A l'issue du calcul, le programme **PSR** fournit deux fichiers de solutions : un fichier binaire (**Save.bin**) et son homologue en format texte (**Psr.out**), qui contiennent toutes les solutions des calculs (fractions molaires des différentes espèces du milieu en fonction de T , P , φ , τ , ...). Le fichier de sortie peut contenir (si l'option est choisie) les résultats

d'analyse de sensibilité des voies réactionnelles, permettant de mieux comprendre l'importance de certaines espèces ou réactions. En fonction de ces résultats, l'utilisateur peut alors décider de modifier le mécanisme cinétique pour ajuster les prévisions de son modèle à l'expérience. Le fichier (**Save.bin**), quant à lui, servira d'interface en tant que fichier d'entrée pour faire une analyse ultérieure plus fine des résultats avec des programmes spécifiques de post-traitement, tel que **KINALC**, **CSP** et autres. Un troisième fichier de solutions **Restaut** (en format texte) résume sous forme de tableau les différentes informations sur le temps de séjour, la température et les fractions molaires de toutes espèces impliquées dans le mécanisme réactionnel. Ce dernier est présenté de manière conviviale pour vérifier rapidement le bon déroulement des calculs.

2.2.7.2 Equations du réacteur parfaitement agité.

Pour décrire le modèle PSR, on applique les lois de conservation des espèces et de l'énergie pour le système dans des conditions stationnaires. Les équations caractéristiques sont les suivantes (l'étoile \star se réfère aux conditions d'entrée) [87] :

$$\text{Conservation des espèces} : \dot{m} \cdot (Y_k - Y_k^\star) - f_k \cdot W_k \cdot V = 0 \quad (2.14)$$

$$\text{Conservation de l'énergie} : \dot{m} \cdot \sum_{k=1}^{N_k} (Y_k h_k - Y_k^\star h_k^\star) - Q = 0 \quad (2.15)$$

Dans ce système d'équations, Y_k est la fraction massique de l'espèce k (avec $k = 1, \dots, N_k$), W_k sa masse molaire, V le volume du réacteur, f_k la vitesse molaire de production de la $k^{\text{ième}}$ espèce par unité de volume, h_k l'enthalpie spécifique de l'espèce k et Q la perte de chaleur du réacteur.

Le temps de séjour moyen (τ) est souvent utilisé pour caractériser le réacteur plutôt que le flux massique (\dot{m}). Le temps de séjour moyen, donné par l'équation (2.16), est fonction du volume du réacteur (V) et du flux massique (\dot{m}) :

$$\tau = \frac{\rho \cdot V}{\dot{m}} \quad (2.16)$$

La densité massique (ρ) est calculée à partir de l'équation d'état pour les gaz parfaits :

$$\rho = \frac{P \cdot \bar{W}}{RT} \quad (2.17)$$

$$\bar{W} = \left(\sum_k \frac{Y_k}{W_k} \right)^{-1} \quad (2.18)$$

\bar{W} : masse molaire moyenne, P : Pression, T : Température, R : Constante universelle des gaz parfaits.

La vitesse nette de production de chaque espèce k , f_k est le résultat d'une compétition entre les réactions chimiques contenant cette espèce. On suppose que chaque réaction se déroule en accord avec la loi d'action de masses et que la constante de vitesse de réaction s'écrit sous la forme de l'équation d'Arrhenius modifiée (équation 2.4).

Les équations (2.14) et (2.15) forment un ensemble de $N_k + 1$ équations algébriques non-linéaires qui permettent d'obtenir la température et les fractions molaires des espèces.

Cependant dans certains cas (défaut de convergence de la méthode de résolution du système algébrique), il devient nécessaire d'intégrer le système d'équations différentielles lié au régime transitoire du réacteur. Les équations caractéristiques (2.14) et (2.15) s'écrivent, dans ce cas :

$$\text{Conservation des espèces} : -\dot{m}(Y_k - Y_k^*) + f_k \cdot W_k \cdot V = \rho \cdot V \frac{dY_k}{dt} \quad (2.19)$$

$$\text{ou encore} : \frac{dY_k}{dt} = -\frac{1}{\tau}(Y_k - Y_k^*) + \frac{f_k \cdot W_k}{\rho} \quad (2.20)$$

Conservation de l'énergie :

$$-\dot{m} \cdot \sum_{k=1}^{N_k} (Y_k h_k - Y_k^* h_k^*) - Q = \rho \cdot V \cdot \frac{dh}{dt} \quad (2.21)$$

$$\text{ou encore} \frac{dh}{dt} = -\frac{1}{\tau} \cdot \sum_{k=1}^{N_k} (Y_k h_k - Y_k^* h_k^*) - \frac{Q}{\rho \cdot V} \quad (2.22)$$

où h est l'enthalpie spécifique moyenne définie par la relation :

$$h = \sum_{k=1}^{N_k} Y_k h_k \quad (2.23)$$

L'équation de conservation de l'énergie est souvent exprimée en fonction de la température (T) plutôt que de l'enthalpie (h).

La chaleur spécifique moyenne est définie par la relation :

$$C_p = \sum_{k=1}^{N_k} Y_k C_{p_k} \quad (2.24)$$

A partir des équations (2.20) et (2.21), on peut écrire :

$$\frac{dh}{dt} = C_p \frac{dT}{dt} + \sum_{k=1}^{N_k} h_k \frac{dY_k}{dt} \quad (2.25)$$

La combinaison des équations (2.20), (2.22) et (2.25) permet de rendre compte de l'évolution de la température au sein du réacteur :

$$C_p \frac{dT}{dt} = -\frac{1}{\tau} \sum_{k=1}^{N_k} Y_k^* (h_k^* - h_k) - \sum_{k=1}^{N_k} \frac{h_k f_k W_k}{\rho} - \frac{Q}{\rho \cdot V} \quad (2.26)$$

Dans le cadre de ce travail, **Chemkin-II**, **PSR**, **CSP** et **VODE** ont été mis ensemble pour le calcul de la cinétique chimique.

VODE (Variable-coefficient Ordinary Differential Equation) est un code écrit en FORTRAN. Il est constitué d'un ensemble de sous-programmes utilisés pour résoudre les systèmes d'équations différentielles du premier ordre avec conditions initiales. Ce système est de la forme :

$$\frac{dY_k}{dt} = f(t, Y_1, Y_2, \dots, Y_{N_k}) \quad (2.27)$$

avec conditions initiales $Y(t_0) = Y_{k,0}$, N_k représente le nombre d'équations différentiels. Y_k est une variable (fraction massique, température) et $Y_{k,0}$ est la valeur initiale de cette variable.

2.2.5 Outils mathématiques de la méthode “Computational Singular Perturbation”.

Pour réduire un schéma de cinétique chimique, il faut pouvoir distinguer les espèces rapides, dites quasi-stationnaires, des espèces lentes et discriminer les réactions à l'équilibre partiel des autres réactions, l'objectif final étant de s'en affranchir. Les méthodes de réduction permettant une telle identification ont été énoncées au chapitre 1.

Dans cet étude nous allons implémenter une méthode de type CSP (Computational Singular Perturbation) qui a pour auteur Lam et Goussis [46, 47], basée sur la dynamique des systèmes. Elle présente l'avantage d'être une procédure mathématique et de ce fait programmable.

2.2.6 Fondement de la méthode

La méthode se fonde sur l'idée qu'une grande partie des réactions élémentaires peuvent être regroupées en différents groupes ou modes de réactions, chacun d'eux étant identifiés par un temps caractéristique unique. Pour ce faire, les R termes de

$$g = \sum_{r=1}^R S_r \cdot F^r \quad (2.28)$$

sont projetés en N groupes linéairement indépendants qui seront séparés, pour un temps donné, en groupes rapides et en groupes lents, où S_r est le vecteur du coefficient stoechiométrique de la $r^{i\grave{e}me}$ réaction et F^r le taux de la $r^{i\grave{e}me}$ réaction. Où R et N représentent respectivement le nombre de réactions élémentaires et le nombre d'espèces chimiques. CSP exploite le fait que g est de taille N et, par conséquent, peut être représenté à l'aide d'une base quelconque de N vecteurs. Ainsi, pour un ensemble de réactions élémentaires donné, la vitesse g est unique, mais de représentations multiples. La question qui se pose alors est celle de l'existence d'une représentation optimale de g . En d'autres termes, existe-t-il une base idéale pour représenter g ?

2.2.7 Vecteurs de base

Soit $a_i(t)$ $i = 1, \dots, N$, un ensemble de N vecteurs colonnes de tailles N linéairement indépendants. L'ensemble des vecteurs lignes $b^i(t)$ $i = 1, \dots, N$ peut être calculé à partir de la relation d'orthonormalité :

$$b^i \circ a_j = \delta_{ij}, \quad i, j = 1, \dots, N \quad (2.29)$$

Où \circ est le produit scalaire dans un espace de dimension N et δ_{ij} , $i, j = 1, \dots, N$ est la matrice identité de taille N .

Dans cette base, g peut s'écrire :

$$g = \sum_{i=1}^N a_i f^i \quad (2.30)$$

où f^i est la projection de g le long de a_i , f^i est donné par :

$$f^i = b^i \cdot g, \quad i = 1, \dots, N \quad (2.31)$$

$$= \sum_{r=1}^R B_r^R \cdot F^r, \quad i = 1, \dots, N \quad (2.32)$$

$$\text{avec } B_r^i = b^i \circ S_r, \quad i = 1, \dots, N \quad (2.33)$$

Chaque terme de la somme de l'équation (2.30) ne représente plus, comme dans l'équation (2.28), une réaction élémentaire, mais un groupe de réaction, a_i et f^i étant respectivement la direction et l'amplitude de $i^{\text{ième}}$ groupe. La réaction (2.31) montre que f^i est une combinaison linéaire de vitesses de réactions élémentaires, on l'appellera souvent la vitesse du $i^{\text{ième}}$ groupe de réactions. De même, a_i est une combinaison de S_r et sera souvent appelé vecteur stœchiométrique du $i^{\text{ième}}$ groupe de réactions. Le problème qui se pose alors est de déterminer a_i et donc b^i , $i = 1, \dots, N$ de manière à ce que :

- a chaque f^i soit associé un temps caractéristique unique ;
- lorsqu'un groupe de réaction tend à disparaître, sa vitesse devient exponentiellement nulle avec ce temps caractéristique.

La représentation alternative de g qui répond à tous ces critères est dite optimale.

2.2.8 Bases idéales

Un ensemble de vecteurs de base acceptable doit non seulement ordonner les groupes en fonction de leur vitesse (le premier étant le plus rapide), mais aussi assurer que la vitesse d'un groupe qui tend à disparaître, est négligeable. On peut écrire l'évolution de la vitesse du groupe par rapport au temps. De l'équation (2.31), on a :

$$\frac{df^i}{dt} = \frac{db^i}{dt} \circ g + b^i \circ J \circ g, i = 1, \dots, N \quad (2.34)$$

Où $J = (\partial g / \partial Y)$ est la matrice jacobienne de g . L'équation (2.34) peut encore s'écrire sous la forme :

$$\Lambda_j^i = \left[\frac{db^i}{dt} + b^i \circ J \right] \circ a_j, i, j = 1, \dots, N \quad (2.35)$$

on peut également écrire l'évolution de b^i :

$$\frac{db^i}{dt} = \sum_{j=1}^N \Lambda_j^i b^j - b^i \circ J, i = 1, \dots, N \quad (2.36)$$

La non linéarité de g se manifeste par le fait que J n'est en général pas une matrice constante. A chaque instant t , les valeurs propres de J peuvent être calculées, sinon elles peuvent être approchées par les éléments de la diagonale de la matrice Λ_j^i , $i, j = 1, \dots, N$ l'inverse de ces valeurs propres λ_i , noté τ_i , à la dimension du temps et est appelé temps caractéristique. En les ordonnant par ordre croissant en valeur absolue, on obtient :

$$\|\tau_1\| \prec \dots \prec \|\tau_2\| \prec \dots \prec \|\tau_N\| \quad (2.37)$$

Ce qui donne une hiérarchie des vitesses de groupe. Plus le temps caractéristique est petit, plus le groupe est rapide. On peut maintenant caractériser une base idéale : une base idéale doit diagonaliser Λ_j^i , $i, j = 1, \dots, N$, les éléments diagonaux étant rangés dans l'ordre décroissant, et par conséquent découple tous les groupes. Pour un problème non linéaire, les vecteurs propres dépendent du temps et ne diagonalisent pas Λ_j^i , $i, j = 1, \dots, N$. Dans ce cas, on cherche les vecteurs de base tels que Λ_j^i , $i, j = 1, \dots, N$ soit une

matrice blocs-diagonale, c'est-à-dire tels que les groupes rapides et les groupes lents soient le moins possible mélangés.

En effet, d'un point de vue pragmatique, il n'est pas nécessaire de découpler tous les groupes. Il est suffisant de découpler approximativement les groupes rapides des groupes lents, de manière à ce que les groupes restant couplés, soient négligeables à la précision voulue. Le couplage des groupes rapides entre eux (ou des groupes lents entre eux) ne pose pas de difficultés et peut être toléré.

2.2.9 Classification des groupes

En général, pour un temps de résolution donné, trois types de groupes sont distingués : les groupes rapides à éliminer, les groupes actifs et les groupes dormants. Si τ_i est le temps caractéristique du $i^{\text{ième}}$ groupe, on suppose :

$$\tau_m \ll \tau_k, m = 1, \dots, M, k = M + 1, \dots, N \quad (2.38)$$

L'entier M étant tel que : $\|\tau_m\| \ll t, m = 1, \dots, M$ où t est le temps courant, les M groupes rapides à éliminer donnent un ensemble de M équations d'état telles que :

$$f^m = b^m \circ g = \sum_{r=1}^R B_r^m F^r \simeq 0; m = 1, \dots, M \quad (2.39)$$

Chacun des groupes rapides à éliminer associé par **CSP** avec une approximation à l'état quasi-stationnaire (pour certaines espèces radicalaires) ou une approximation à l'équilibre partiel (pour un certain ensemble des réactions rapides). Les $(N - M)$ groupes restants sont conservés dans l'écriture du système simplifié. Néanmoins, l'amplitude de certains de ces groupes lents peut être très petite et même nulle. Leur contribution dans l'écriture de g devient alors négligeable : ce sont les groupes dormants (en général, on se passe d'eux).

Remarque : Pour un groupe k dormant, $f^k \simeq 0$ n'est pas une équation utile. Elle ne peut pas être utilisée comme équation d'état.

Comment peut-on projeter la matrice de base idéale $a_i, i = 1, \dots, M$ afin de découpler les groupes rapides des groupes lents ?

2.2.10 Matrice de projection

Soient $a_i, b^i, i = 1, \dots, N$, les bases ‘‘ idéales ‘‘ trouvées et M le nombre de groupes rapides qui tendent à disparaître. On peut calculer les matrices de projections suivantes.

projection sur le groupe $m, m = 1, \dots, M$

$$Q_m(M) = a_m \circ b^m \quad (2.40)$$

-projection sur le sous espace des groupes rapides,

$$Q_m(M) = \sum_{m=1}^M a_m \circ b^m = \sum_{m=1}^M Q_m \quad (2.41)$$

La déduction de la matrice de projection sur le sous-espace des groupes lents, soit $(I - Q(M))$ se fait facilement. Ces matrices sont de taille $N \times N$. Ainsi, pour C vecteurs colonnes et L vecteurs lignes, on a la décomposition suivante :

$$C = C_{rapide} + C_{lent} \quad (2.42)$$

$$L = L_{rapide} + L_{lent} \quad (2.43)$$

avec $C_{rapide} = Q(M) \circ C, \quad L_{rapide} = L \circ Q(M)$

$$C_{lent} = [I - Q(M)] \circ C \quad L_{lent} = L \circ [I - Q(M)]$$

Après le découplage des groupes, comment déterminer les radicaux CSP ?

2.2.11 Radical- CSP

Un radical-CSP est une espèce dont l'EDO peut être remplacée par une équation d'état. Très souvent, le radical-CSP est un radical au sens de Williams (espèce chimique qui n'est ni réactant initial, ni produit principal). La méthode CSP permet d'identifier les radicaux susceptibles d'être déduits d'une équation d'état donnée par la relation (2.41). On dispose donc d'un pointeur sur le radical-CSP noté $Q_m(i), m = 1, \dots, M$. $Q_m(i)$ est le $i^{\text{ième}}$ élément de la diagonale de la matrice $Q(M)$ (c'est en fait $Q_m(i, i)$). Il est à noter que $Q_m(i)$ est sans dimension et la somme sur les N composantes est 1 ou

0. Géométriquement, $Q_m(i)$ est la mesure de la projection du $i^{\text{ième}}$ vecteur unité sur le $m^{\text{ième}}$ groupe de réaction. Chaque fois que $Q_m(i)$ n'est pas petit (devant l'unité), l'espèce numéro i est dite radical-CSP.

Pour un système réactionnel simple, tel que le PSR, qui est homogène et stable, le mécanisme réduit peut être déduit une fois que les espèces QSS et des réactions rapides sont identifiées. Cependant, pour des systèmes inhomogènes et transitoires une espèce peut être déclarer QSS (radical-CSP) dans un domaine et non-QSS dans un autre domaine. Obtenir des radicaux-CSP pour la construction des mécanismes globaux (réduits) nécessite une intégration du pointeur des radicaux dans tout le domaine de calcul. Dans la section suivante, nous présenterons des algorithmes d'intégration d'après Zuozhu [90].

2.3.6.1 l'Algorithme d'intégration des radcaux-CSP

Posons D^i le $i^{\text{ième}}$ pointeur radical-CSP dans Q_m , pour un système de réaction inhomogène et transitoire, il est facile d'intégrer directement des pointeurs radicaux-CSP :

$$I_1^i = \frac{1}{L} \int_0^L D^i dt \quad (2.44)$$

Pour un système de réaction transitoire.

$$I_1^i = \frac{1}{T} \int_0^T D^i dt \quad (2.45)$$

Comme indiqué par Massias [44, 45], l'intégration direct du pointeur radical-CSP Eq. (2.44) produit un résultat médiocre, car cette méthode sélectionne le réactif CH_4 comme radical-CSP. Il montre qu'une meilleure intégration implique la concentration des espèces et le taux de production des espèces.

$$I_2^i = \frac{1}{L} \int_0^L D^i \frac{q^i}{(x^i + \varepsilon_1) \cdot (q_{max}^i + \varepsilon_2)} dx \quad (2.46)$$

Pour un système de réaction transitoire.

$$I_2^i = \frac{1}{T} \int_0^T D^i \frac{q^i}{(x^i + \varepsilon_1) \cdot (q_{max}^i + \varepsilon_2)} dt \quad (2.47)$$

Où D^i est le $i^{\text{ième}}$ pointeur radical-CSP dans Q_m , x^i la concentration du $i^{\text{ième}}$ espèce, q^i le taux de production de la $i^{\text{ième}}$ espèce, q_{max}^i le taux de production maximal de la $i^{\text{ième}}$ espèce dans tout le domaine de calcul Q_m , ε_1 et ε_2 sont des réels positifs, ceci pour éviter de diviser un nombre par zéro dans le cas où x^i ou q_{max}^i est égale à zéro. ε_1 et ε_2 doivent être choisis avec soin. Leur ordre doit être beaucoup plus bas que x^i et q_{max}^i de tel sorte que leurs influences sur I_2^i soit négligeable. En ajoutant la concentration des espèces et le taux de production des espèces comme facteur de pondération dans l'algorithme d'intégration, les résultats des radicaux-CSP s'avèrent plus raisonnables. Ceci concorde avec le fait que les faibles concentrations des espèces et des taux de production rapide, qui se traduisent par une grande valeur de I_2^i , ces derniers sont susceptibles d'être considérés comme candidat au radical-CSP. La méthode donnée par les équations (2.46) et (2.47) peut donner des résultats acceptables. Cependant pour résoudre le problème de la "négligence", un meilleur algorithme est proposé par Zuozhu [90].

Soit R_n^i l'intégrant de l'espèce i dans le $n^{\text{ième}}$ domaine de calcul (représente le $n^{\text{ième}}$ domaine physique spatial dans les réacteurs inhomogènes ou $n^{\text{ième}}$ pas de temps de calcul dans les réacteurs transitoires).

$$R_n^i = D_n^i \frac{q_n^i}{(x_n^i + \varepsilon_1)(q_n^i + \varepsilon_2)} \quad (2.48)$$

Où D_n^i est le pointeur radical original, x_n^i et q_n^i sont respectivement la concentration et le taux de production de la $i^{\text{ième}}$ espèce dans le $n^{\text{ième}}$ domaine de calcul. L'équation (2.48) est similaire aux équations (2.46) et (2.47). Le pourcentage de la $i^{\text{ième}}$ espèce de la sommation de tous les pointeurs des radicaux dans le $n^{\text{ième}}$ domaine de calcul est défini par :

$$W_n^i \equiv \frac{R_n^i}{R_{n,som}} \quad (2.49)$$

Où $R_{n,som}$ est la somme de tous les pointeurs des radicaux dans le $n^{\text{ième}}$ domaine de calcul. Avec la définition d'équation (2.49), nous pouvons définir un nouvel algorithme :

$$I_3^i \equiv \frac{1}{L} \int_0^L W_n^i dx \quad (2.50)$$

Pour un système de réaction transitoire :

$$H_n^i = \frac{R_n^i}{R_{n,som}} h_n \quad (2.51)$$

Où h_n est le taux de dégagement de chaleur dans le $n^{ième}$ domaine de calcul. En intégrant l'équation (2.51), nous avons :

$$I_4^i = \frac{1}{L} \int_0^L H_n^i dx \quad (2.52)$$

Pour un système de réaction transitoire :

$$I_4^i = \frac{1}{T} \int_0^T H_n^i dt \quad (2.53)$$

Zuozhu montre que les équations (2.52) et (2.53) donnent des meilleurs résultats. Une fois identifier les radicaux-CSP, nous pouvons déterminer les réactions liées à ces derniers. Le mécanisme global peut être construit après avoir déterminé des radicaux-CSP et des réactions rapides [91, 92, 93].

2.2.12 Identification des radicaux-CSP et des réactions rapides

Pour construire un mécanisme réduit pour un problème spécifique, le nombre d'espèces QSS doit être déterminé à l'avance. Cependant aucun algorithme n'existe pour déterminer M . le seul moyen possible est de classer par ordre croissant les valeurs des pointeurs des radicaux-CSP, puis choisir les M premier espèces comme les espèces QSS et $N - M$ comme les espèces non-QSS. Vérifier les M espèces QSS jusqu'à la satisfaction des résultats. Sinon changez M et répétez le processus précédant. Une bonne intuition et expérience humaine peut être utilisée pour cette procédure de choix.

Il existe un pointeur permettant d'identifier les réactions très rapides d'un groupe donné de réactions rapides. Pour ce faire, on définit la quantité $(S_r)^{-1}$ comme étant l'ensemble de vecteurs lignes, orthonormale à l'ensemble $S_r, r = 1, \dots, R$ étant linéairement indépendants. Le pointeur sur la réaction rapide du groupe $m, m = 1, \dots, M$, noté $P_m(r)$ est donné par :

$$P_m(r) = (S_r)^{-1} \circ Q_m \circ S_r \quad r = 1, \dots, R \quad (2.54)$$

Ce nombre est sans dimension et normalement de l'ordre de l'unité, il mesure la projection du $i^{\text{ième}}$ vecteur stœchiométrique sur le $m^{\text{ième}}$ groupe. Chaque fois que $P_m(r)$ n'est pas petit devant l'unité, la $r^{\text{ième}}$ réaction est dite rapide pour le $m^{\text{ième}}$ groupe.

2.2.13 Modèle simplifié

Une fois la base idéale et les matrices de projection obtenues, la projection du vecteur de vitesse globale peut s'effectuer. On a :

$$g = g_{\text{rapide}} + g_{\text{lent}} = Q(M) \circ g + (I - Q(M)) \circ g \quad (2.55)$$

$$g = \sum_{m=1}^M a_m f^m + \sum_{k=M+1}^N a_k f^k \quad (2.56)$$

M étant le nombre de groupes rapides qui sont exclus de l'ensemble des groupes actifs pour un temps donné. Soit C_r le vecteur, projeté de S_r sur le sous espace des groupes lents, on a :

$$C_r = (I - Q(M)) \circ S_r \quad (2.57)$$

Il peut être interprété physiquement comme le vecteur des coefficients stœchiométriques effectifs ou réduits de la $r^{\text{ième}}$ réaction. Ceci permet d'écrire :

$$g_{\text{lent}} = \sum_{r=1} C_r F^r \quad (2.58)$$

Le modèle simplifié est donc gouverné par le système,

$$\frac{dY}{dt} \simeq g_{\text{lent}} \quad (2.59)$$

Les paramètres comme l'indice d'importance et le degré de participation nous permettent d'avoir une idée sur les modes et les réactions actives.

2.2.14 Indice d'importance

Une fois la représentation optimale de g obtenue, on peut se poser l'une ou l'autre des questions suivantes :

-Quelle est l'importance du $j^{\text{ième}}$ groupe de réactions sur l'évolution du $i^{\text{ième}}$ réactant ?

Pour y répondre, il suffit d'évaluer la quantité suivante :

$$K_j^i = \frac{\|a_j^i f^j\|}{\sum_{k=1}^N \|a_k^i f^k\|} \quad i, j = 1, \dots, N \quad (2.60)$$

-quelle est l'importance de la $r^{\text{ième}}$ réaction sur l'évolution du $i^{\text{ième}}$ réactant ?

Pour y répondre, il suffit d'évaluer la quantité suivante :

$$I_r^i = \frac{\|C_r^i F^r\|}{\sum_{k=1}^N \|C_k^i F^k\|} \quad i = 1, \dots, N, \quad r = 1, \dots, R \quad (2.61)$$

Ces quantités sont comprises entre 0 et 1 et leurs importances sont d'autant plus significatives qu'elles sont proches de 1 .

2.2.15 Indice de participation

De façon complémentaire à l'indice d'importance, il est important de connaître le degré de participation de la $r^{\text{ième}}$ réaction élémentaire dans l'expression de vitesse de la réaction j du groupe i lorsque la représentation de g est optimale.

Ce degré de participation est mesuré par l'indice de participation qui s'écrit :

$$P_r^i = \frac{\|B_r^i F^r\|}{\sum_{k=1}^R \|B_k^i F^k\|} \quad i = 1, \dots, N, \quad r = 1, \dots, R \quad (2.62)$$

Ainsi, si $P_r^i \prec \varepsilon_2$, $\varepsilon_2 \prec \prec 1$ étant une précision donnée, la $r^{\text{ième}}$ réaction élémentaire est un participant mineur dans l'expression de la vitesse f^i du $i^{\text{ième}}$ groupe.

Après le calcul des indices d'importances et de participations nous pouvons sortir le système simplifié.

2.2.16 Système minimum

Le système simplifié, généré par CSP sous la forme $g = \sum_{r=1}^R C_r F^r$, étant acquis, on utilise les indices de participations et d'importances pour identifier l'ensemble minimum d'espèces ainsi que l'ensemble minimum de réactions qu'il est nécessaire de prendre en compte pour former le système réduit qui représente g à la précision voulue.

Cette approche de réduction est basée sur l'analyse : des indices d'importance (Eq. 2.60) du $j^{\text{ème}}$ groupe de réactions sur l'évolution du $i^{\text{ème}}$ réactant et l'importance de la $r^{\text{ème}}$ réaction sur l'évolution du $i^{\text{ème}}$ réactant (Eq. 2.61). Ces quantités sont comprises entre 0 et 1 et leurs importances sont d'autant plus significatives qu'elles sont proches de 1.

La matrice a_j^i (Eq. 2.60) étant subdivisée en trois groupes de réactions : rapide, lent et dormant. Pour chaque M donner par le "pointeur-CSP". f^k est la vitesse du $k^{\text{ème}}$ groupe de réaction et K_j^i est l'importance du $j^{\text{ème}}$ groupe de réactions sur l'évolution du $i^{\text{ème}}$ réactant.

$$K_j^i \simeq 0, \quad i = 1, \dots, M \text{ et } j = 1, \dots, N \quad (2.63)$$

L'équation (2.63) traduit les groupes de réactions rapides à éliminer du système détaillé.

$$K_j^i \simeq 1, \quad i = M + 1, \dots, N - E \text{ et } j = 1, \dots, N \quad (2.64)$$

L'équation (2.64) traduit les groupes de réactions lents à conserver du système détaillé.

$$K_j^i \simeq 0, \quad i = N - E + 1, \dots, N \text{ et } j = 1, \dots, N \quad (2.65)$$

L'équation (2.65) traduit les groupes de réactions dormants à négliger du système détaillé.

Ou M, E, N représentent respectivement le nombre de radicaux-CSP, nombre d'éléments chimiques contenus dans le mécanisme détaillé et le nombre total d'espèces chimiques que contient le mécanisme détaillé.

A chaque pas d'intégration l'utilisateur doit se rassurer que les équations (2.63) et (2.65) sont vérifiées, sinon passé au pas d'intégration suivant.

Les équations (2.63) et (2.65) étant satisfaites, nous pouvons sélectionner les réactions à conserver à travers l'équation (2.61).

Pour toute valeur $1 > I_r^i > I_{\text{erreur}} > 0$ la réaction r peut être considérée dans le mécanisme réduit.

I_{erreur} est une erreur relative fixée par l'utilisateur en fonction de la précision sollicitée. Il faut noter que plus I_{erreur} est faible, le nombre de réactions élémentaires à conserver est déplus en plus petit et nous devons observer un gap déplus en plus aussi faible entre le mécanisme réduit et détaillé. Cet approche nous a permis de réduire le mécanisme de Yang and Pope à 19 et 22 réactions en fonction de I_{erreur} . Ces mécanismes nous ont permis de mener une étude numérique sur la combustion turbulente d'une flamme de diffusion.

2.3 La modélisation numérique de la combustion turbulente

Après avoir obtenu le mécanisme réduit, nous allons l'appliquer à la simulation d'une flamme de diffusion turbulente dans le code CFD OpenFoam [94]. Cette section présente l'équation de conservation de la masse, la quantité de mouvement, l'équation de transport des espèces, écrites en coordonnées cartésien [86].

2.3.1 Les équations moyennées de Favre

2.3.1.1 Equation de conservation de la masse.

$$\frac{\partial \bar{\rho}}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \underline{\tilde{u}}) = 0 \quad (2.66)$$

2.3.1.2 Equation de conservation de la quantité de mouvement.

$$\frac{\partial \bar{\rho} \underline{\tilde{u}}}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \underline{\tilde{u}} \underline{\tilde{u}}) = \nabla \cdot (-p \underline{\underline{I}} + (\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_t})(\nabla \underline{\tilde{u}} + {}^t \nabla \underline{\tilde{u}}) - \frac{2}{3}(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_t})\nabla(\underline{\tilde{u}} \underline{\underline{I}})) \quad (2.67)$$

2.3.1.2 Equation de bilan des espèces

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{Y}_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \underline{\tilde{u}} \tilde{Y}_k) = \nabla \cdot ((\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t})\nabla \tilde{Y}_k) + \tilde{\omega}_k \quad (2.68)$$

2.3.1.3 Equation de fraction de mélange

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{\phi}}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \tilde{u} \tilde{\phi}) = \nabla \cdot \left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t} \right) \nabla \tilde{\phi} \right) \quad (2.69)$$

2.3.1.4 Equation de fraction de mélange de la variance

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{\phi}''}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \tilde{u} \tilde{\phi}'') = \nabla \cdot \left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t} \right) \nabla \tilde{\phi}'' \right) + 2 \frac{\mu_t}{\sigma_t} \nabla \tilde{\phi} \nabla \tilde{\phi} - \bar{\rho} \tilde{\chi} \quad (2.70)$$

2.3.1.5 Equation de taux de dissipation scalaire

Le taux de dissipation scalaire $\tilde{\chi}$ peut être modélisé à travers une expression algébrique ou pas une équation de transport.

- Modèle algébrique

$$\tilde{\chi} = R_\tau \frac{\tilde{\epsilon}}{\tilde{k}} (\tilde{\phi}'')^2 \quad (2.71)$$

- Equation de transport par Jones [95].

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{\chi}}{\partial t} + \Delta \cdot (\bar{\rho} \tilde{u} \tilde{\chi}) = \Delta \cdot \left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t} \right) \Delta \tilde{\chi} \right) - C_1 \bar{\rho} \frac{(\tilde{\chi})^2}{\tilde{\phi}''^2} - C_2 \bar{\rho}^2 \frac{C_\mu \tilde{k}}{\mu_t} \tilde{\chi} + C_3 \bar{\rho} \frac{C_\mu \tilde{k}}{\sigma_t} (\Delta \tilde{\phi})^2 + C_4 \mu_t \frac{\tilde{\chi}}{\tilde{k}} \|\tilde{S}\|^2 \quad (2.72)$$

Où $\|\tilde{S}\| = \sqrt{2 \tilde{S}_{ij} \tilde{S}_{ij}}$.

- Densité

$$\bar{\rho} = \frac{P}{R \tilde{T} \sum_k \frac{Y_k}{M_k}} \quad (2.73)$$

Où P est la pression, R la constante universelle des gaz parfait, \tilde{T} la température moyenne et M_k la masse molaire moléculaire de l'espèce k.

2.3.2 Modèle de turbulence

Le modèle k- ε standard est utilisé dans ce travail pour modéliser la combustion turbulente d'une flamme de diffusion turbulente, simuler la combustion turbulente du biogaz issue des différentes sources et simuler la combustion turbulente de l'enrichissement du biogaz par le d'hydrogène. Dans le modèle k- ε standard, k et ε sont modelés avec les équations de transports suivantes [96].

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + P_k + P_b - \rho \varepsilon - Y_M + S_k \quad (2.74)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho \varepsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} (P_k + C_{3\varepsilon} P_b) - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{k} + S_\varepsilon \quad (2.75)$$

Où μ_t , P_k sont Y_M représente respectivement la viscosité turbulente, production d'énergie cinétique de turbulence et la contribution à la dilatation fluctuante des turbulences compressible au taux de dissipation global décrit par :

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (2.76)$$

$$P_k = -\rho u'_i u'_j \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \quad (2.77)$$

$$Y_M = 2\rho \varepsilon M_t^2 \quad (2.78)$$

2.3.3 Modèles de combustion turbulents

Les modèles dit à chimie non-infiniment rapide important pour les flammes non-premélangées ont été développées tout en considérant qu'avant inflammation, il y'a un temps nécessaire au mélange du combustible et le comburant. Les deux modèles considérés dans notre cas sont les modèles "Partially Stirred Reactor" (PaSR) et le Modèle Intermittent Lagrangien (MIL) qui considère respectivement τ_{mix} et τ_{ig} , pour prendre en compte le temps de mélange ou d'ignition. Cette sous-section est donc dédiée à la description des deux modèles soumis à notre étude.

2.3.4 Modèle Intermittent Lagrangien (MIL)

Le Modèle de lagrangien intermittent est utilisé pour calculer la vitesse de réaction moyenne présente dans l'équation de transport des espèces, dans le cas de flammes non-prémélangées suivant l'expression [97, 98, 99, 100, 101, 102] :

$$\tilde{\omega}_Y = \int_0^1 \tilde{P}(\phi) \int_{\tau_{ig}}^{\infty} \dot{\omega}_Y(\tau, \phi) \tilde{P}_\tau(\tau) d\tau d\phi \quad (2.79)$$

où $\tilde{P}(\phi)$, $\dot{\omega}_Y(\tau, \phi)$, $\tilde{P}_\tau(\tau)$, τ_{ig} représentent respectivement, la PDF de la fraction de mélange ϕ , le terme source instantané, la PDF de la turbulence et les délais d'ignition. Pour déterminer le taux de consommation moyenne de chaque espèce, MIL obéit aux hypothèses suivantes :

- Tout d'abord, les termes scalaires de micros mélange sont représentés avec le modèle Interaction par Echange avec la Moyenne (IEM) [103]. Ainsi, l'ensemble d'équation Lagrangienne de la fraction de mélange et la fraction moyenne des espèces réactives et la température sont :

$$\begin{aligned} \frac{dY_i}{dt} &= \frac{\tilde{Y}_i - Y_i}{\tau_y} + \dot{\omega}_i \\ \frac{dT}{dt} &= \frac{\tilde{T} - T}{\tau_T} + \dot{\omega}_T \\ \frac{d\phi}{dt} &= \frac{\tilde{\phi} - \phi}{\tau_\phi} \end{aligned} \quad (2.80)$$

-En suite, on utilise une hypothèse de réaction globale pour le dégagement de la chaleur et les principales espèces, mais inclut une chimie complexe à travers les délais d'ignition.

- Enfin, l'hypothèse d'une combustion brusque est considérée ; cela signifie que l'énergie d'activation de la réaction chimique est supposée être très grande ; par conséquent, les particules mélangées mettent un temps fini à s'enflammer, puis sautent instantanément de la ligne de mélange à la ligne d'équilibre (Fig 2.4).

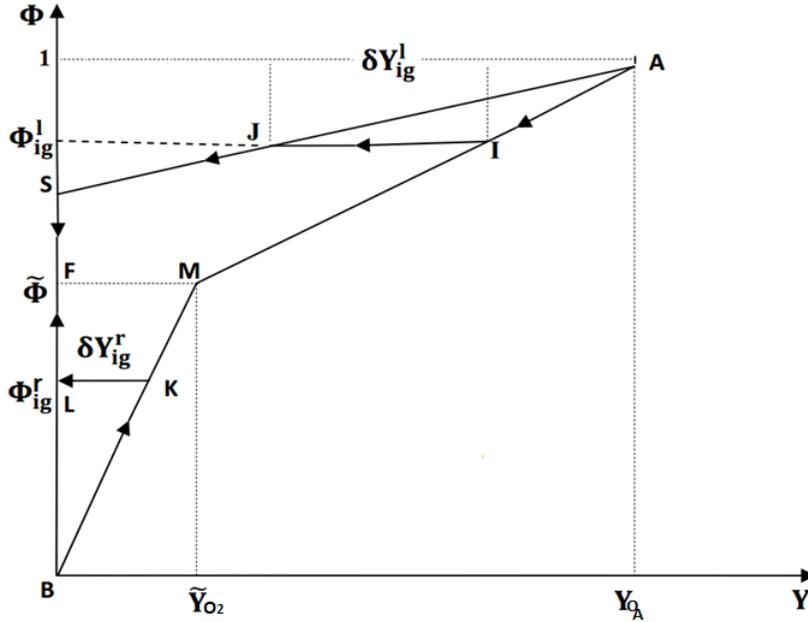


FIGURE 2.4 – Présentation du modèle MIL

À partir de la troisième hypothèse, la structure de la flamme est construite dynamiquement à partir de deux possibilités de combustion par diffusion : Mélange sans réaction (avant allumage) correspondant aux lignes de mélange BM et AM, et Chimie infiniment rapide (après allumage) correspondant aux lignes ASF et BLF (Fig 2.4). La transition entre le mélange sans combustion et le régime «mélangé-brûlé» est contrôlée par la position d'un délais d'allumage τ_{ig} (ligne KL et IJ), dans la répartition des temps de mélange turbulent carburant/air. Pour une espèce donnée Y_i , son taux de production chimique moyen dépend de la portion de trajectoire considérée, à savoir : mélange, saut et équilibre chimique.

Mélange : Sur le segment BM et AM, on assiste uniquement à un mélange des particules fluides, soit $\tilde{\omega}_Y^{mix} = 0$.

Saut : Les segments ASF et BLF correspondent à l'inflammation des particules mélangées. Ici, le taux moyen doit également être pris en compte.

Segment ASF :

$$\tilde{\omega}_Y^{Jump} \parallel_{ASF} = \int_{\tau_k}^{\infty} \frac{\tilde{\phi} - \phi_{ig}^r(r)}{\tau} \delta Y_{ig}^r \tilde{P}(\phi_{ig}^r(\tau)) \tilde{P}_{\tau}(\tau) d\tau \quad (2.81)$$

avec $\delta Y_{ig}^r = \frac{\tilde{Y}_i}{\tilde{\phi}} \phi_{ig}^r(\tau)$

Segment ASF :

$$\tilde{\omega}_Y^{Jump} \|_{BLF} = \int_{\tau_k}^{\infty} \frac{\tilde{\phi} - \phi_{ig}^r(r)}{\tau} \delta Y_{ig}^l \tilde{P}(\phi_{ig}^l(\tau)) \tilde{P}_\tau(\tau) d\tau \quad (2.82)$$

avec $\delta Y_{ig}^r = \left(\frac{Y_{O_2} - \tilde{Y}_{O_2}}{1 - \phi} - \frac{Y_{O_2}}{1 - \phi_{st}} \right) \phi_{ig}^l(\tau) + \left(1 + \frac{\phi_{st}}{1 + \phi_{st}} \right) Y_{O_2} - \frac{1}{1 - \phi} (Y_{O_2} - \tilde{Y}_{O_2})$

$$\tilde{\omega}_Y^{Jump} = \tilde{\omega}_Y^{Jump} \|_{ASF} + \tilde{\omega}_Y^{Jump} \|_{BLF} \quad (2.83)$$

Equilibre : KL et IJ

Segment KL :

$$\tilde{\omega}_Y^{Equi} \|_{KL} = \int_0^1 \tilde{P}(\phi) \left(\int_{\tau_{ig}}^{\infty} \dot{\omega}_{eq}^r(\phi, \tau) \tilde{P}_\tau d\tau \right) d\phi \quad (2.84)$$

avec $\dot{\omega}_{eq}^r(\phi, \tau) = -\frac{\tilde{Y}_{O_2}}{\tau}$

Segment IJ :

$$\tilde{\omega}_Y^{Equi} \|_{IJ} = \int_0^1 \tilde{P}(\phi) \left(\int_{\tau_{ig}}^{\infty} \dot{\omega}_{eq}^l(\phi, \tau) \tilde{P}_\tau d\tau \right) d\phi \quad (2.85)$$

avec $\dot{\omega}_{eq}^l(\phi, \tau) = -\frac{\tilde{Y}_{O_2}(1 - \phi_{st}) - Y_{O_2}(1 - \phi_{st})}{\tau(1 - \phi_{st})}$

Pour calculer les différents taux moyennés ; les entrées de MIL sont les suivantes :

- La PDF du temps de mélange de la turbulence, $\tilde{P}_\tau(\tau)$, déterminée suivant les études de Bray et al.
- La PDF de la fraction de mélange $\tilde{P}(\phi)$, qui est présumée et obtenue par la fonction beta.
- La concentration moyenne du Combustible ;

Une fois que les quantités ci-dessus ont été déterminées, la sortie indique le taux de réaction moyen calculé par la relation suivante.

$$\tilde{\omega}_Y = \tilde{\omega}_Y^{mix} + \tilde{\omega}_Y^{Jump} + \tilde{\omega}_Y^{equi} \quad (2.86)$$

2.3.5 Présentation du modèle réacteur partiellement agité (PaSR)

Initialement Chomiak, et en suite d'autres travaux [104, 105, 106, 107] ont appliqué la cinétique détaillée et le concept de réacteur partiellement agité (PaSR) pour une correcte description de l'interaction chimie/turbulence. Le modèle PaSR repose sur le concept EDC basé sur la séparation, au sein d'un volume de contrôle fluide (ou réacteur), entre les structures de micromélange et les structures environnantes, et la représentation canonique du réacteur homogène PSR. Il permet de prendre en compte les effets de micromélange dans les écoulements fortement turbulents, contrairement au modèle PSR qui en est incapable. La figure 2.5 donne brièvement une représentation conceptuelle de ce modèle.

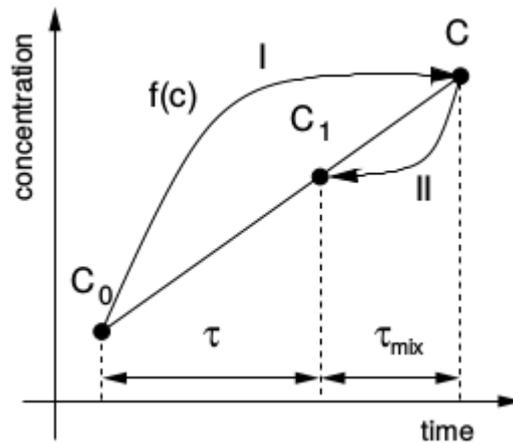


FIGURE 2.5 – Présentation du modèle PaSR

- Le modèle PaSR considère que toute cellule de calcul est divisée en une partie réactive et une partie non réactive. La somme des parties réagissant et non réagissant est la cellule réelle (la plus petite unité spatiale) et, inversement, est inconnue ;

- La partie en réaction est également traitée comme un réacteur parfaitement agité (PSR) où les espèces sont mélangées de manière homogène ;

- Au début de l'itération temporelle t_0 , la concentration moyenne dans la cellule est c_0 et est connue par l'itération précédente.

- Le mélange à l'intérieur de la partie en réaction réagit complètement et la nouvelle concentration à l'intérieur de cette partie est c . Cette concentration est inconnue à tout moment et la durée de cette réaction est égale au pas de temps numérique de l'itération

en cours τ .

-lorsque la réaction est terminée, on suppose que les espèces de la partie en réaction et de la partie qui ne réagit pas se mélangent à cause de la turbulence et que le temps de cette procédure est dicté par le temps de mélange τ_{mix} ;

- à la fin du pas de temps t_1 , la concentration moyenne dans la cellule est c_1 ; C'est l'inconnu que le modèle résout.

Les équations suivantes décrivent le processus de manière mathématique :

$$c_1 = k^*c + (1 - k^*)c_0 \quad (2.87)$$

avec

$$k^* = \frac{\tau}{\tau + \tau_{mix}} \quad (2.88)$$

où k^* est la fraction réactive de la cellule de réacteur. Comme on le voit dans l'équation (2.88), la taille relative de chaque partie du réacteur est dictée par une relation entre le temps de séjour (également le pas de temps numérique τ) et le temps de mélange turbulent (ou échelle de temps turbulent) τ_{mix} . En fait, si le temps de séjour est beaucoup plus long que le temps de mélange turbulent, k^* sera proche de l'unité et le réacteur sera plus entièrement réactif. La relation entre le taux de consommation/production non fermé des espèces k τ_k et le taux laminaire de consommation/production des espèces est donnée par :

$$\tilde{\omega} = \frac{c_1^k - c_0^k}{\tau} = \frac{\tau_c}{\tau_c + \tau_{mix}} \dot{\omega}_k = k \dot{\omega}_k \quad (2.89)$$

avec $\dot{\omega}_k$ est le taux de production/consommation instantané et $\tau_{mix} = C_{mix} \sqrt{\frac{\mu_{eff}}{\rho \varepsilon}}$, dans notre cas, nous avons pris $C_{mix} = 0.03$.

2.3.6 Simulation numérique (CFD OpenFoam)

“Computational Fluid Dynamics” (CFD) est l'analyse de systèmes impliquant des écou-

lements des fluides, le transfert de chaleur et des phénomènes pouvant être décrit par des mécanismes de cinétiques chimiques au moyen d'une simulation par ordinateur. La technique est très puissante et son application couvre une large gamme de zones industrielles et non industrielles. Le principal but des développements dans le domaine des codes CFD est de fournir une capacité comparable à d'autres outils d'ingénierie assisté par ordinateur, tels l'analyse des contraintes des codes informatique. La raison principale pour laquelle CFD est à la traîne, est l'immense complexité de la compréhension du comportement des écoulements de fluide.

Bien que CFD présente de nombreux avantages, il n'est pas encore au niveau où il peut être aveuglement utilisé sans une connaissance pratique de la physique, et malgré la montée en puissances des ordinateurs (vitesse de calcul disponible), le CFD n'a pas encore atteint un niveau où il peut être utilisé pour le calcul en temps réel. Les analyses numériques nécessitent beaucoup de temps de calculs pour que les résultats convergent. Les deux types les plus courants de codes CFD sont :

- Source ouverte et gratuite
- Source fermée et commerciale

Dans ce travail, notre attention est portée sur le code CFD OpenFoam, qui est gratuit et la source est ouverte aux utilisateurs, il est écrit en langage informatique C++. De plus, son code source est accessible et modifiable par ces utilisateurs. Ainsi chaque utilisateur peut développer son solveur OpenFoam s'il le souhaite.

2.3.6.1 La structure OpenFoam

Une procédure OpenFoam est structurée autour des algorithmes numériques qui peuvent traiter des problèmes d'écoulement de fluide, cet espace de travail CFD contient principalement trois éléments principaux Figure 2.6 :

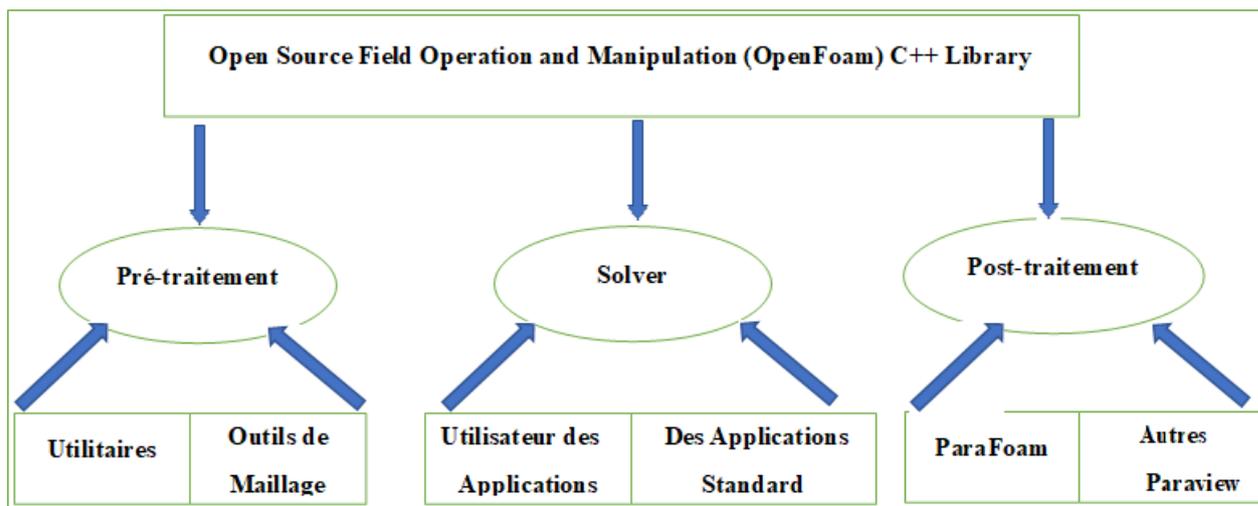


FIGURE 2.6 – Aperçu de la structure OpenFoam

2.3.6.1.1 pré-traitement

- Définir la géométrie de la région d'intérêt : le domaine de calcul ;
- la génération du maillage : la subdivision de la région d'écoulement en petit sous-domaines qui ne se chevauchent pas ;
- Sélectionner les modèles qui prennent en compte l'interaction des phénomènes physico-chimiques (modèle de combustion et de turbulence) ;
- Définir les propriétés des fluides ;
- La spécification des conditions aux limites chimiques et physiques appropriées aux différents sous-domaines ;

La solution à un problème d'écoulement (vitesse, pression, température, etc.) est définie à l'intérieur de chaque nœud. La précision d'une solution CFD dépend fortement du nombre de nœud dans le maillage. En général, plus le nombre de cellules est grand, la précision de la solution est meilleure. Les mailles optimales sont souvent non uniformes : plus serrées dans les zones de variations importantes d'un point à un autre et moins serrées dans les régions à faible changement.

GAMBIT et Gmsh Mesh sont des logiciels qui nous permettent de générer des configurations géométriques (maillages).

2.3.6.1.2 Solveur

Il existe au moins quatre techniques distinctes de résolution numérique des équations : la méthode de différence finie, la méthode des éléments finis, les méthodes spectrales et la méthode à volume fini. Dans ce travail, notre attention est portée sur la méthode des volumes finis, car elle est au cœur des solveurs de CFD les mieux établis. La méthode des volumes finis comprend les étapes suivantes :

- Intégration de la conservation des équations de masse, d'énergie et de quantité de mouvement sur tout le volume de contrôle du domaine ;
- Discrétisation- conversion des équations à intégrer en un système d'équations algébriques ;
- Solution des équations algébriques par une méthode itérative ;

La plupart des solveurs dans OpenFoam ont la structure de base suivante :

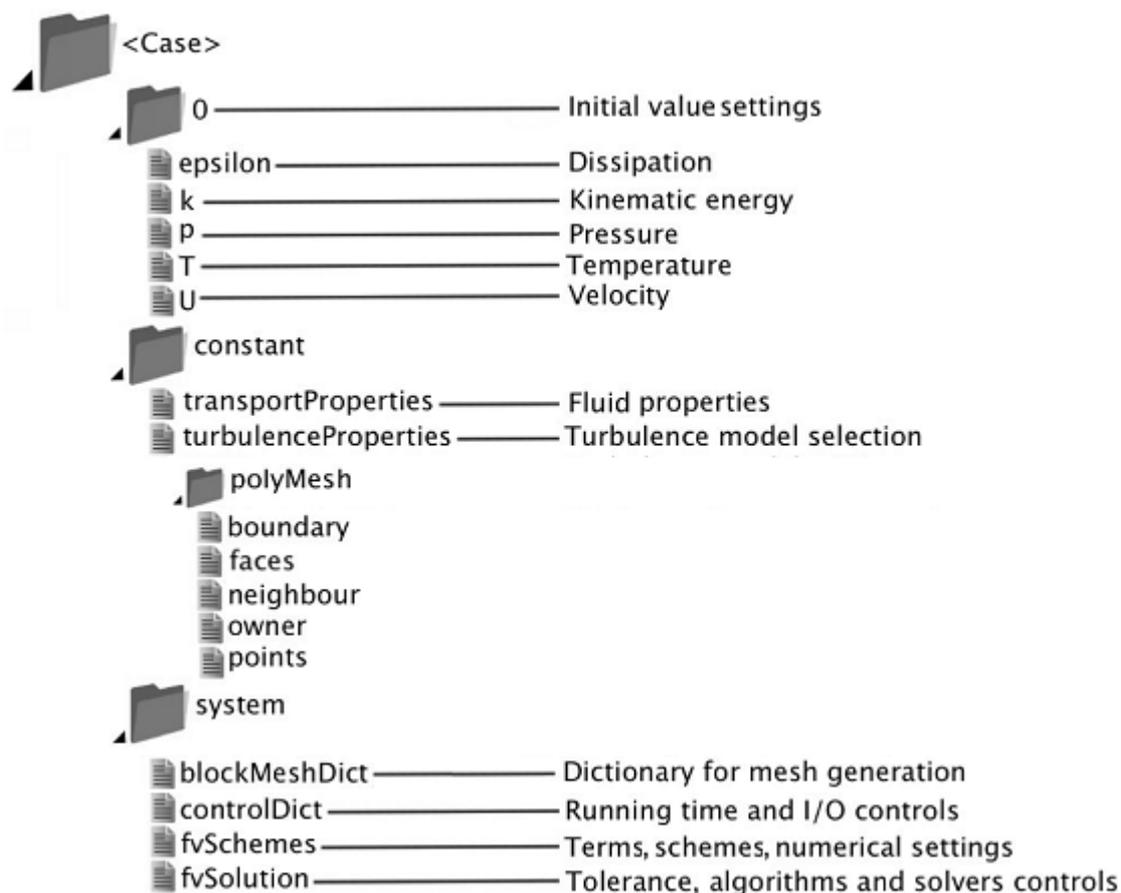


FIGURE 2.7 – schéma des répertoires principaux (0, constant, system) [108].

2.3.6.1.2 Répertoire 0

Le répertoire 0 inclut les conditions initiales pour l'exécution de la simulation. Dans chaque fichier de ce dossier, les conditions initiales des différents paramètres sont définies. Habituellement on trouve dans ce dossier, les fichiers T, P, U respectivement, température, pression, vitesse et les espèces chimiques (CH₄, O₂, H₂, CO₂, H₂O...) qui contiennent les conditions initiales.

2.3.6.1.3 Répertoire constant

Le répertoire constant contient généralement un sous-répertoire et quelques fichiers. Ces fichiers (généralement) comprennent les propriétés des matériaux, simulation physique et chimique. Dans le répertoire « polyMesh », les données de maillage y sont stockées. Le fichier de limites dans ce répertoire polyMesh inclut les données de limites de maillage, par exemple type, le groupe de patches, le nombre de faces ainsi que le numéro de la face.

2.3.6.1.4 Répertoire system

Les paramètres du solveur et la méthode de volume fini peuvent être trouvés et modifiés dans ce répertoire. Ce répertoire contient trois principaux fichiers :

-**fvSchemes** : Le schéma de discrétisation utilisé pour chaque terme d'équations sont définies dans ce fichier.

-**fvSolution** : Ce fichier contient les réglages de la méthode de couplage entre la pression et la vitesse, les méthodes numériques qui sont utilisées pour résoudre des différentes quantités, ainsi que la tolérance finale pour la convergence de ces quantités.

-**controlDict** : Ce fichier contient l'heure à laquelle la simulation commence (startFrom), l'heure à laquelle la simulation se termine (StopAt), le pas de temps (deltaT), l'intervalle de temps de sauvegarde des données (writeFormat), le fichier de sauvegarde des données de la précision (writePrecision), et également en cas de modification des fichiers pendant l'exécution peuvent affecter l'exécution ou non (runTimeModifiable).

2.3.6.2 Post-traitement

C'est là qu'on visualise les résultats et on peut se poser la question de savoir, qu'est-ce qui passe avec le modèle? les éléments typiques du post-traitement sont :

- Définition du plan de coupe adaptés à la visualisation ;
- Contour des différentes variables ;
- Tracé des champs de vecteurs ;
- Tracés des courbes ;

Il existe plusieurs outils de post-traitement ; outils de poste traitement intégré fluent et Tecplot sont des exemples commerciaux bien connus. Il y'a aussi des outils à source ouverte tels que ParaFoam et paravew.

2.4 Description et simulation de la géométrie

Dans l'objectif de valider le mécanisme réduit et par conséquent notre approche de la méthode CSP, nous avons appliqué ces derniers à la simulation d'une flamme de diffusion turbulente CH₄/H₂/N₂ de type "DLR flame A" dans le code CFD OpenFoam version 2.40 [94], il est basé sur la méthode des volumes finis. Ce code a une bibliothèque de classes C++ open source ; l'algorithme SIMPLE et le schéma d'intégration Gaussien de second ordre y sont utilisés. Le solveur dédié aux problèmes d'écoulements réactifs de combustion est le solveur reactingFOAM. Les modèles de combustion pour prendre compte de l'interaction entre la chimie-turbulence sont PaSR et MIL. Le choix du modèle MIL est motivé par le fait qu'il nécessite une table de délais d'ignition calculée à partir des mécanismes de cinétiques chimiques détaillés ou squelettiques. k- ϵ standard est le modèle de turbulence choisi, il comporte deux équations de transports écrites en k et ϵ . La validation de ce mécanisme réduit à travers une table de délais d'ignition montre que ce dernier peut être utilisé pour étudier les délais d'allumage et le taux d'inflammation dans les turbines à gaz et des moteurs utilisés dans les centrales thermiques à gaz. Par la suite le même mécanisme réduit est utilisé pour la combustion numérique du biogaz, ici des caractéristiques physico-chimiques des biogaz produits à

partir des différentes sources sont étudiés en mettant en avance l'effet de la teneur du méthane (CH_4), de l'hydrogène (H_2) et du dioxyde de carbone (CO_2) sur la structure de la flamme.

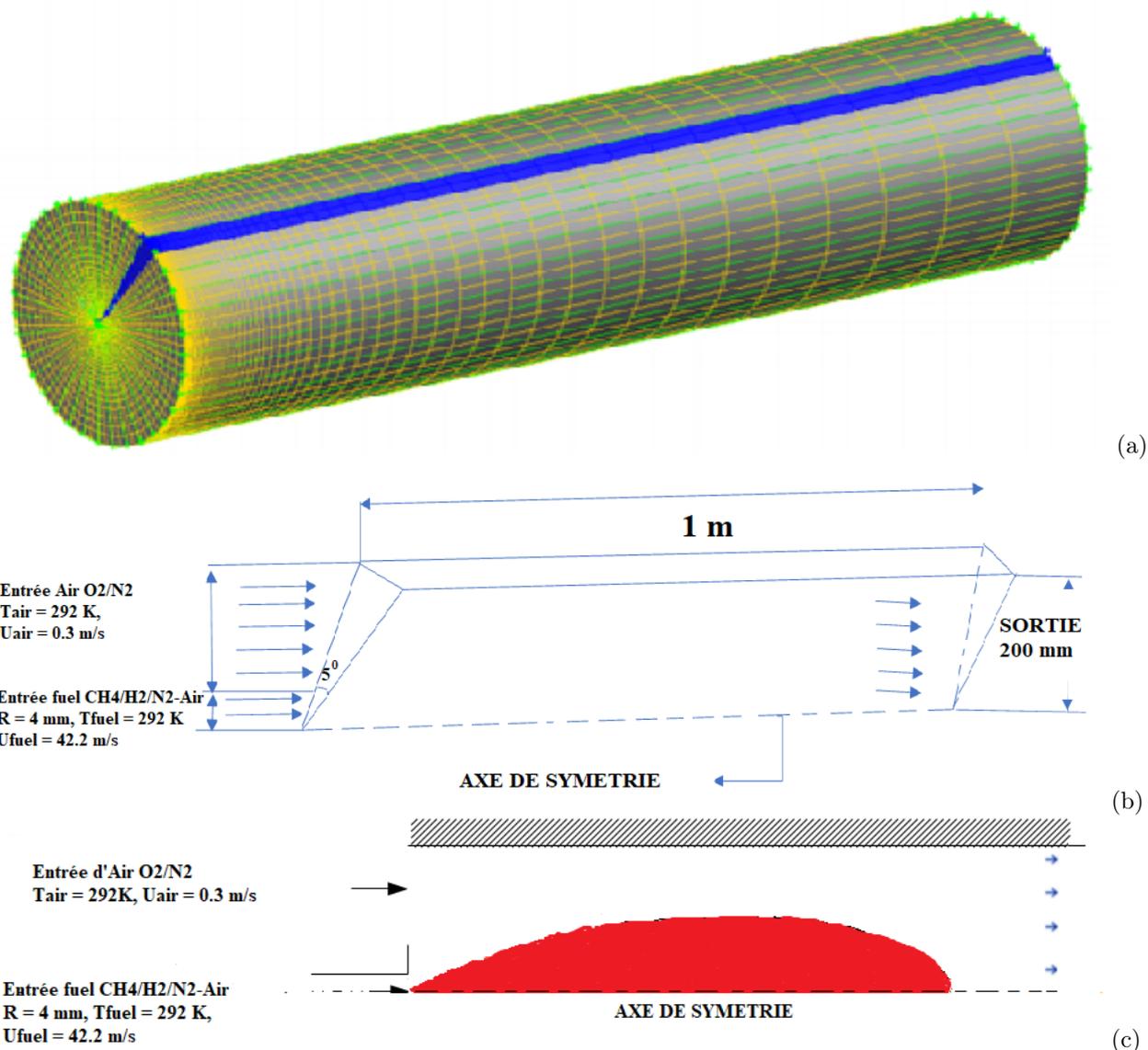


FIGURE 2.8 – Configuration de la flamme de diffusion de type “ DLR Flame A ”, composition fuel : $\text{CH}_4 = 22.1\%$, $\text{H}_2 = 33.2\%$ et $\text{N}_2 = 44.7\%$.

Dans OpenFOAM, il est prévu dans la bibliothèque des lignes de codes permettant d'exécuter des calculs en parallèle basée sur le MPI (Message Passing Interface). Les calculs actuels ont été effectués en utilisant 4 cœurs de 3,2 Ghz chacun, en parallèle, sur un ordinateur de type core i5 dont la mémoire ram est 8 Go.

À l'aide du code Gmsh, est généré un maillage 2D-axisymétrique représentatif du

domaine de calcul de la flamme de type “DLR flame A” avec une longueur de 1 m, un rayon de 4 mm et un angle de 5° dans la direction azimutale (Figure 2.8). Ceci est considéré pour isoler les effets de murs sur la structure de la flamme, sur la base des données expérimentales. Dans le cas présent, les cellules à solutions indépendantes sont établies à l’aide de 72 nœuds dans la direction radiale et 110 nœuds suivant la direction axiale. Les conditions aux limites utilisent “zerogradient” aux murs, “wedge” à l’avant et arrière de notre maillage axis-symétrique et les conditions aux entrées et sorties du domaine dépend de la variable choisie.

2.5 Conclusion partielle

Il était question dans ce chapitre de présenter les outils mathématiques et numériques qui nous ont permis de réaliser ce travail. Dans un premier temps, nous avons présenté le package Chemkin II qui nécessite à son entrée le mécanisme de cinétique chimique (éléments et espèces chimiques, et réactions élémentaires), ce package possède sa propre base de données thermodynamiques. Par la suite nous avons présenté l’approche de la méthode Computational Singular Perturbation (CSP) qui est basée sur l’analyse des indices d’importance des modes sur l’évolution des espèces et le degré de participation des réactions, Cette approche identifie des réactions importantes à conserver dans le mécanisme réduit via l’indice de participation des réactions et en fin une présentation de l’outils numérique “Computational Fluid Dynamics” (CFD) OpenFoam, qui nous a permis de faire des applications du mécanisme réduit en simulant une flamme de diffusion turbulente de type DLR Flame A du laboratoire Sandia et la combustion numérique du biogaz. Ce code CFD Openfoam a l’avantage d’avoir une source ouverte et gratuite, l’utilisateur peut développer des nouveaux solveurs à partir des solveurs écrits par les auteurs de ce code CFD.

RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

3.1 Introduction

La présentation des résultats et discussions de cette thèse font l'objet de ce chapitre. Il s'agit dans un premier temps d'analyser des données de sorties du programme CSP dans le but de produire le mécanisme réduit, d'analyser des résultats d'intégrations numériques avec le package Chemkin II utilisant les mécanismes détaillé et réduit. Ce chapitre présente également les résultats de simulations numériques d'une flamme turbulente non-prémélangée CH₄/H₂/N₂ dans le code CFD OpenFoam ; ces résultats numériques ont été comparés aux données expérimentales de la flamme de diffusion turbulente de type (DLR flame A) du laboratoire Sandia. Le solveur utilisé ici est "reactingFoam", k-ε standard est utilisé comme modèle de turbulence, "Partially Stirred Reactor" (PaSR) et le Modèle Intermittent Lagrangien (MIL) ont été utilisés comme modèles de combustion. PaSR prends en compte le mécanisme détaillé qui est directement introduit dans le code CFD alors que le modèle MIL utilise la table de délais d'ignition pour évaluer le terme source dans l'équation de transport des espèces. Ces tables de délais d'ignition ont été calculées à partir des mécanismes détaillé et réduit. Notre volonté principale d'utiliser le modèle MIL est de valider la table de délais d'ignition du mécanisme réduit par la méthode CSP. Une analyse comparative est faite entre les modèles de combustion PaSR et MIL appliqués aux mécanisme réduit par la méthode CSP.

Et enfin, une présentation des résultats et discussions de la simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente de la combustion du biogaz avec le mécanisme de cinétique chimique réduit par la méthode CSP est faite. Nous avons trouvé dans la

littérature les compositions chimiques des biogaz produits à partir des ordures ménagères, le lisier de porcs et la biomasse végétale. La simulation de ces derniers nous a permis de comprendre l'effet de la teneur en méthane (CH_4) dans le biogaz. Le Pouvoir Calorifique Inferieur (PCI) du biogaz étant faible et vue la volonté d'utiliser ce gaz comme source d'énergie à l'échelle industrielle, nous présenterons les résultats sur la stabilisation de la flamme et le gain en chaleur dans la chambre de combustion en dopant le biogaz par l'hydrogène.

3.2 Intégration de la méthode "Computational Singular Perturbation".

Le mécanisme utilisé pour valider notre code est celui de Yang et Pope [48], il contient 41 réactions et 16 espèces. Durant le processus d'intégration, à une précision fixée, des mécanismes réduits peuvent être déduits en fonction du nombre de modes rapides. Pour ce mécanisme réactionnel, le nombre de modes rapides (radicaux-CSP) M change en fonction de la dynamique réactionnelle du système. Le nombre de radicaux-CSP varie entre 2 et 10 (Figure 3.1), comme le montre la figure suivante.

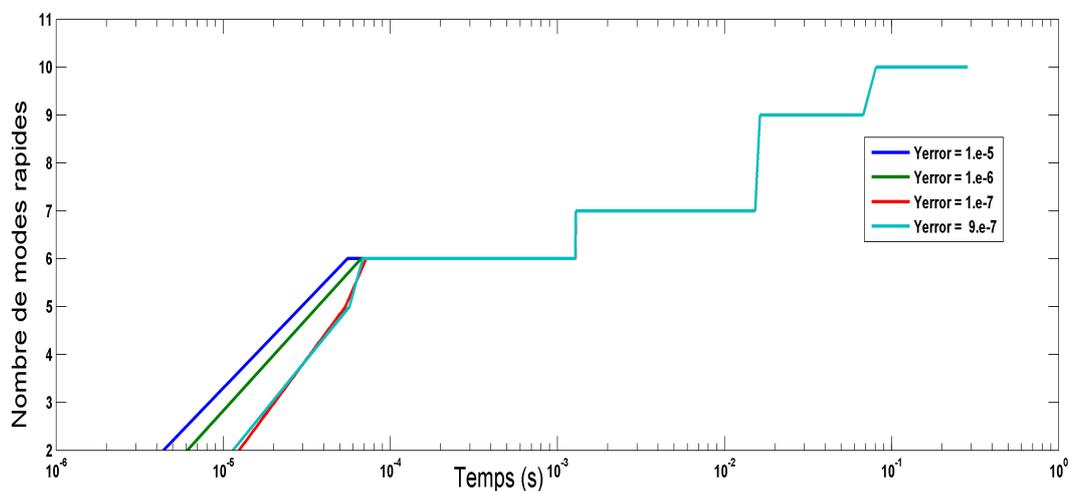


FIGURE 3.1 – Nombre de radicaux-CSP pour différentes valeurs de Yerror.

La figure 3.1 montre l'évolution du nombre de modes rapides en fonction du temps et de Y_{error} . Y_{error} est un paramètre d'erreur relative utilisé pour calculer la matrice jacobienne J et également pour la résolution du système d'équations différentielles ordinaires dérivant du mécanisme de cinétique chimique par le solveur DVODE. Ce

nombre évolue en fonction du temps et surtout en fonction de l'erreur relative fixée par l'utilisateur. Le mécanisme réduit dépend de cette erreur, plus cette erreur est grande, plus le nombre de réactions et espèces à conserver est élevé. En fait, le nombre de modes à conserver est $N-M-E$. avec $N = 16$ le nombre d'espèces chimiques dans le mécanisme détaillé, $M = 10$ le nombre de modes rapides (radicaux-CSP) et $E = 4$ le nombre d'élément chimique (C, H, O, N), donc le nombre de groupes de réactions à conserver est 2 (équation 2.60). Les réactions élémentaires des groupes de réactions du mécanisme à retenir sont déduites de l'équation 2.61 ou 2.62.

Au regard des différentes valeurs de Y_{error} utilisées, il est clair que durant l'intégration, plusieurs modes rapides M ont été déterminés (Figure 3.1). En projetant le terme source sur les vecteurs CSP liés aux modes lents M du système, l'intégrateur CSP filtre efficacement la raideur liée aux modes rapides du système en accordant un pas de temps d'intégration un peu plus grand. Le nombre de modes rapides dépend de la tolérance Y_{error} .

Le tableau 3.1 nous donne le mécanisme réduit à 22 réactions.

Nous avons utilisé le package Chemkin II pour résoudre des systèmes d'équations différentielles ordinaires dérivant des mécanismes réduit (19 et 22 réactions) et détaillé. Les conditions initiales utilisées sont : $T = 1050$ K, $YO_2 = 0.210$, $YCH_4 = 0.02$, $YH_2 = 0.010$, $YN = 0.7690$) et à pression constante $P = 1$ atm.

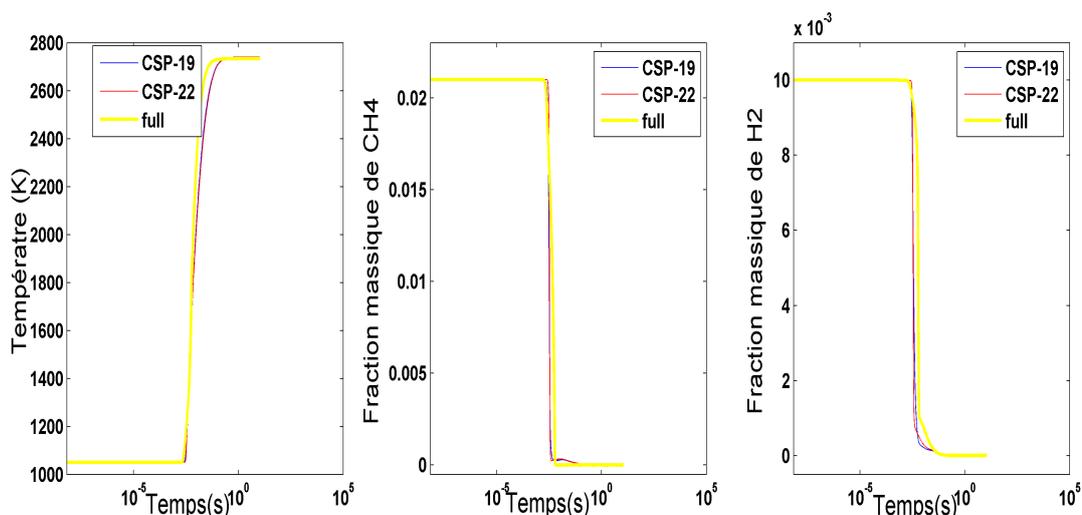


FIGURE 3.2 – Evolution de la température et des fractions massiques des espèces majeures (CH_4 et H_2)

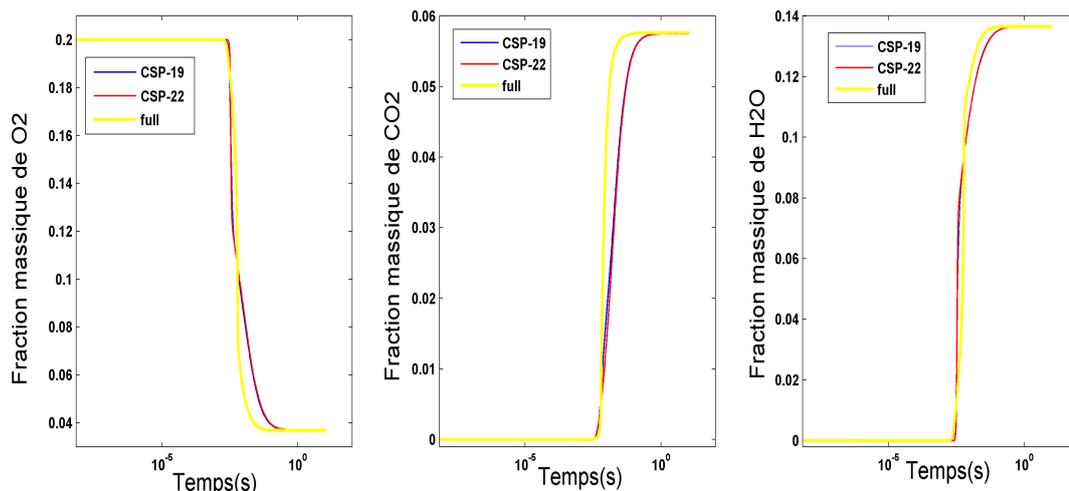


FIGURE 3.3 – Evolution des fractions massiques des espèces majoritaires O_2 , H_2O et CO_2

Les figures 3.2 et 3.3 montrent les profils de la température et des espèces majoritaires de trois mécanismes : un mécanisme détaillé (Yang et Pope), et deux mécanismes réduits (19 et 22 réactions avec $Y_{erreur1} = 1.0E-07$ et $Y_{erreur2} = 1.0E-06$ respectivement), ces mécanismes contiennent respectivement 22 et 19 réactions. Ces profils sont obtenus en résolvant le système d'équation différentiel ordinaire dérivant des trois mécanismes en utilisant le solveur DVODE.

Au regard de ces résultats, on peut conclure que les mécanismes réduits peuvent reproduire les mêmes résultats que le mécanisme détaillé. Pour une bonne capture de phénomènes physiques, nous avons choisi le mécanisme réduit qui compte 22 réactions pour l'application de cette approche de la méthode CSP. Le nombre de modes rapides varie entre 2 et 10, quelque soit l'erreur utilisée, mais qui ne voudrait pas dire qu'on obtiendra le même résultat à la simple raison que les équations (2.63) et (2.65) doivent être vérifiées simultanément à chaque pas d'intégration, c'est qui n'est pas toujours vrai en pratique, peu importe l'erreur utilisée. Ce programme montre que ce mécanisme détaillé comporte 5 espèces majoritaires (importantes), à savoir CH_4 , H_2 , O_2 , CO_2 et H_2O le reste est considéré comme espèces nécessaires, puisqu'elles sont sélectionnées par le pointeur-CSP comme radicales, mais elles sont toutes conservées dans le mécanisme réduit. La différence (figures 3.2 et 3.3) qui existe entre le mécanisme détaillé et les mécanismes réduits s'explique par le fait qu'il y'a forcément perte d'informations

au cours de la réduction. Nous observons également que les différentes courbes (mécanismes réduits et détaillé) de la figure 3.2 et 3.3 changent brusquement de concavité presque au même instant, ce temps est en réalité le temps pour que la combustion prenne corps (délai d'inflammation). La signification physique qui sort de ce résultat est que les mécanismes réduits peuvent être utilisés pour étudier le délai d'allumage dans les turbines à gaz. Les températures maximales des mécanismes réduits et détaillé sont identiques, preuve que ces mécanismes réduits peuvent être également utilisés pour la simulation de la chaleur dégagée, sans perte de données. Le tableau 3.1 nous donne le mécanisme réduit à 22 réactions.

TABLE 3.1 – mécanisme réduite par CSP [42]

	REACTIONS CONSIDEREES	A	b	E
1	$\text{H} + \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{OH} + \text{O}$	1.59E+17	-0.9	16874.0
2	$\text{O} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{OH} + \text{H}$	3.87E+04	2.7	6262.0
3	$\text{OH} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O} + \text{H}$	2.16E+08	1.5	3430.0
4	$\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightleftharpoons \text{HO}_2 + \text{M}$	7.00E+17	-0.8	0.0
5	$\text{HO}_2 + \text{H} \rightleftharpoons \text{OH} + \text{OH}$	1.50E+14	0.0	1004.0
6	$\text{HO}_2 + \text{H} \rightleftharpoons \text{H}_2 + \text{O}_2$	2.50E+13	0.0	693.0
7	$\text{HO}_2 + \text{O} \rightleftharpoons \text{O}_2 + \text{OH}$	2.00E+13	0.0	0.0
8	$\text{HO}_2 + \text{OH} \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$	6.02E+13	0.0	0.0
9	$\text{H}_2\text{O}_2 + \text{M} \rightleftharpoons \text{OH} + \text{OH} + \text{M}$	1.00E+17	0.0	45411.0
10	$\text{CO} + \text{OH} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{H}$	1.51E+07	1.3	-758.0
11	$\text{HCO} + \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{HO}_2 + \text{CO}$	4.20E+12	0.0	0.0
12	$\text{HCO} + \text{M} \rightleftharpoons \text{H} + \text{CO} + \text{M}$	1.86E+17	-1.0	16993.0
13	$\text{CH}_2\text{O} + \text{H} \rightleftharpoons \text{HCO} + \text{H}_2$	1.26E+08	1.6	2175.0
14	$\text{CH}_2\text{O} + \text{O} \rightleftharpoons \text{HCO} + \text{OH}$	3.50E+13	0.0	3513.0
15	$\text{CH}_2\text{O} + \text{OH} \rightleftharpoons \text{HCO} + \text{H}_2\text{O}$	7.23E+05	2.5	-970.0
16	$\text{CH}_3 + \text{HO}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3\text{O} + \text{OH}$	2.28E+13	0.0	0.0
17	$\text{CH}_4 + \text{H} \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{H}_2$	7.80E+06	2.1	7744.0
18	$\text{CH}_4 + \text{O} \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{OH}$	1.90E+09	1.4	8676.0
19	$\text{CH}_4 + \text{OH} \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{H}_2\text{O}$	1.50E+06	2.1	2438.0
20	$\text{CH}_4 + \text{HO}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$	4.60E+12	0.0	17997.0
21	$\text{CH}_3\text{O} + \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_2\text{O} + \text{HO}_2$	4.28E-13	7.6	-3528.0
22	$\text{CH}_3\text{O} + \text{M} \rightleftharpoons \text{CH}_2\text{O} + \text{H} + \text{M}$	1.00E+14	0.0	25096.0

3.3 Simulations numériques

Le mécanisme présenté ci-dessus est validé dans la simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente de type « DLR Flame A » où les résultats ont été comparés aux données expérimentales de la Sandia, par la suite il a été également validé par la simulation numérique de la combustion turbulente du biogaz.

3.3.1 Simulation de la flamme de diffusion turbulente CH₄/H₂/N₂ de type "DLR-flame A" .

Dans cette partie, nous modélisons une flamme de diffusion turbulente non-prémélangée CH₄/H₂/N₂-air. Une étude sur l'évolution de la température et des fractions massiques moyennes est faite suivant quelques positions radiales et l'axe centrale de la chambre de combustion. Connue sous le nom de "DLR flame A," cette flamme a été expérimentalement élaboré par Bergmann et al. [103] . Le fuel est de composition molaire : 22.1% CH₄ , 33.2% H₂ and 44.7% N₂, émane d'un tuyau en acier inoxydable de 8 mm de diamètre intérieur avec une vitesse de jet de 42.2 ± 0.5 m/s ($Re = 15,200$). L'hydrogène est utilisé dans l'expérience pour stabiliser la flamme et l'addition du nitrogène est faite dans le but de diminuer le rayonnement thermique et pour améliorer la qualité des mesures expérimentales. Le diamètre du tube et la vitesse du coflow d'air à l'entrée de l'écoulement sont respectivement 140 mm et 0.3 m/s. Le fuel et l'air ont tous deux pour températures à l'entrée de 292K. La pression utilisée dans ce travail est la pression ambiante de 990 mbar et la fraction de mélange à la stœchiométrie est de 0.167. Les données expérimentales pour la température et les fractions massiques moyennes de Favre sont obtenues sur le site-web des Laboratoires de Sandia [109]. Ici, l'interaction chimie-turbulence est prise en compte par le modèle de combustion "Partially Stirred Reactor" (PaSR), k- ϵ comme modèle de turbulence.

On remarque à travers les figures 3.4 à 3.11 que les résultats calculés avec le mécanisme réduit sont tout à fait conformes à ceux calculés avec le mécanisme détaillé et les données expérimentales de la flamme "DLR flame A" proposée par le laboratoire Sandia. Dans cette sous-section, les résultats des simulations effectués sont comparés aux données expérimentales sur trois positions axiales : $X/D = 5, 10$ et 20 . Les quantités radiales moyennées de Favre étudiées ici sont la température et des fractions massiques moyennes des espèces majoritaires CH₄, H₂, O₂, CO₂ et H₂O comme montré sur les Figures 3.4 à 3.11.

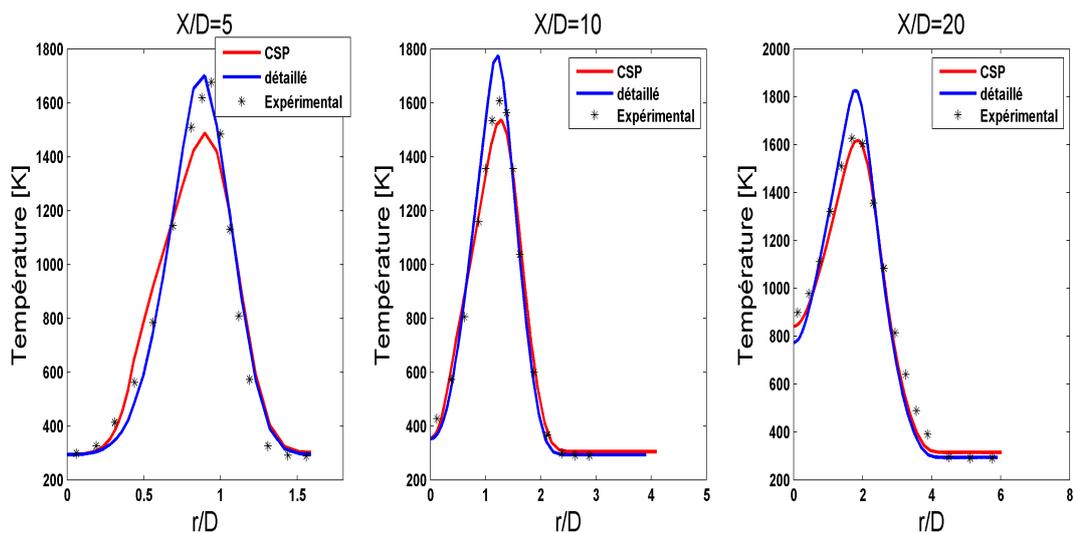


FIGURE 3.4 – Profil radial de la température à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).

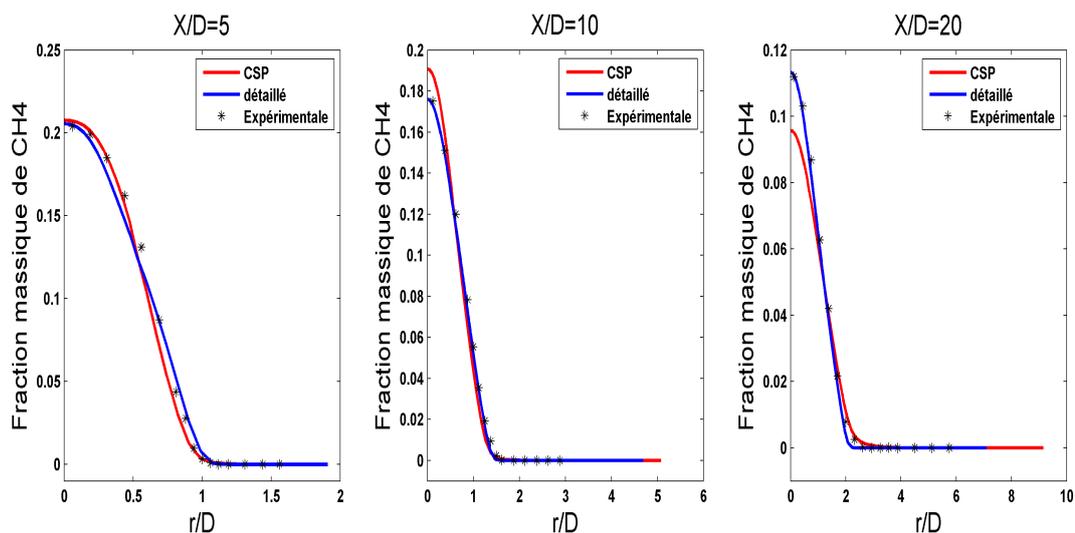


FIGURE 3.5 – Profil radial de la fraction massique moyenne de CH_4 à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).

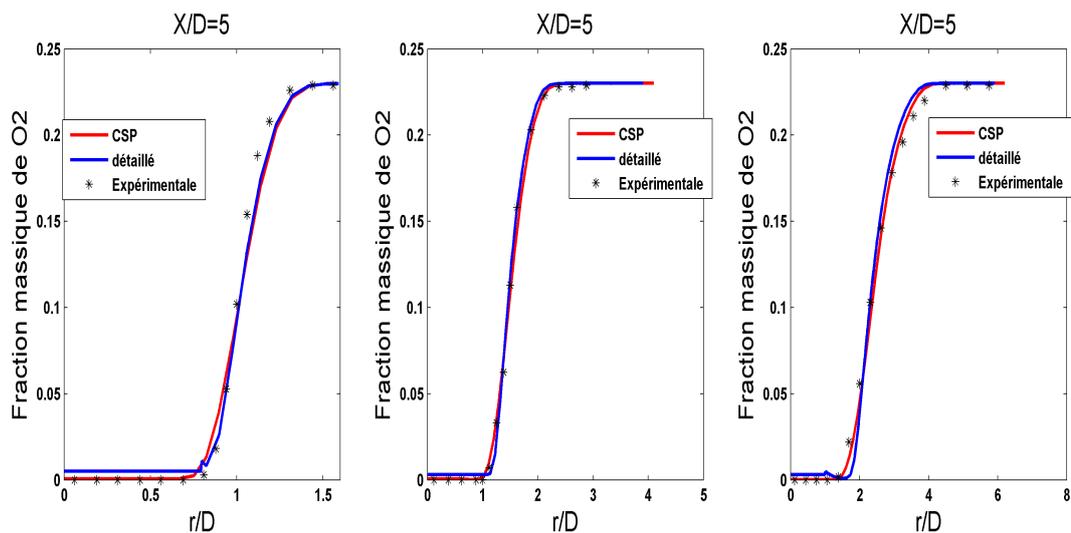


FIGURE 3.6 – Profil radial de la fraction massique moyenne de O2 à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).

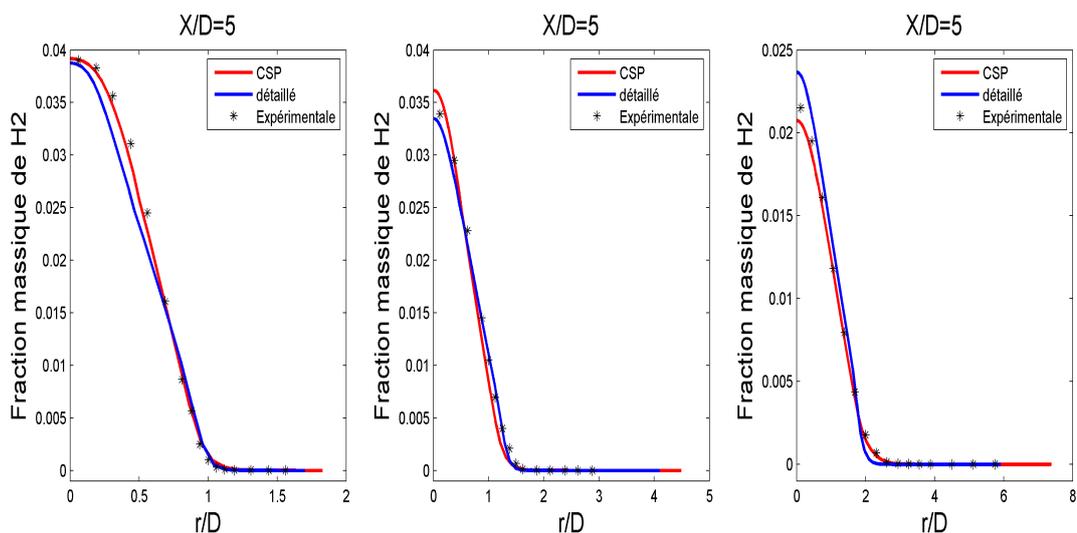


FIGURE 3.7 – Profil radial de la fraction massique moyenne de H2 à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).

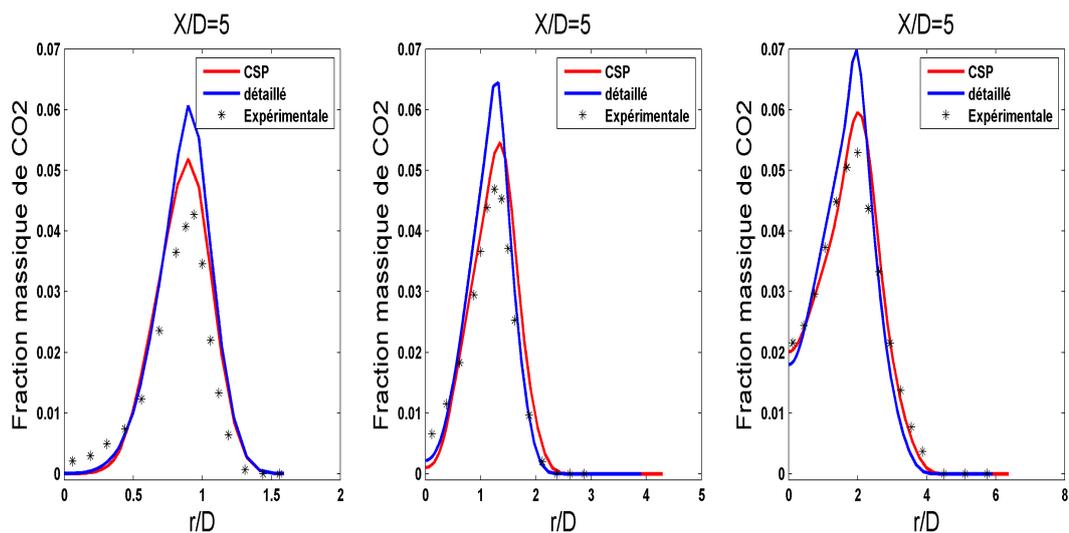


FIGURE 3.8 – Profil radial de la fraction massique moyenne de CO₂ à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).

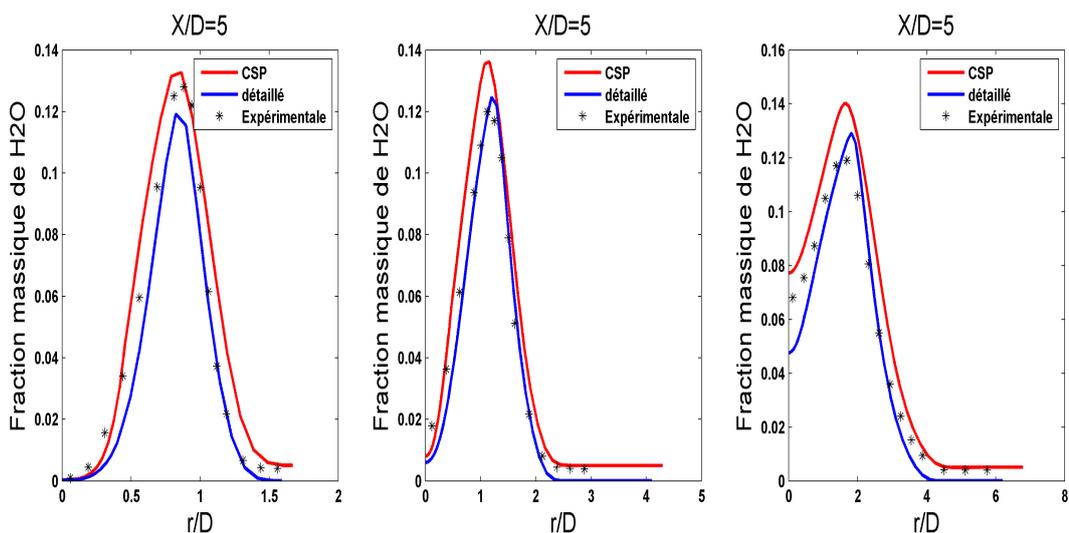


FIGURE 3.9 – Profil radial de la fraction massique moyenne de H₂O à des positions $x/D = 5, 10$ et 20 . Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FUL, couleur bleu).

Ces mêmes quantités sont évaluées suivant les profils axiaux tel que présenté par les figures 3.10 et 3.11 .

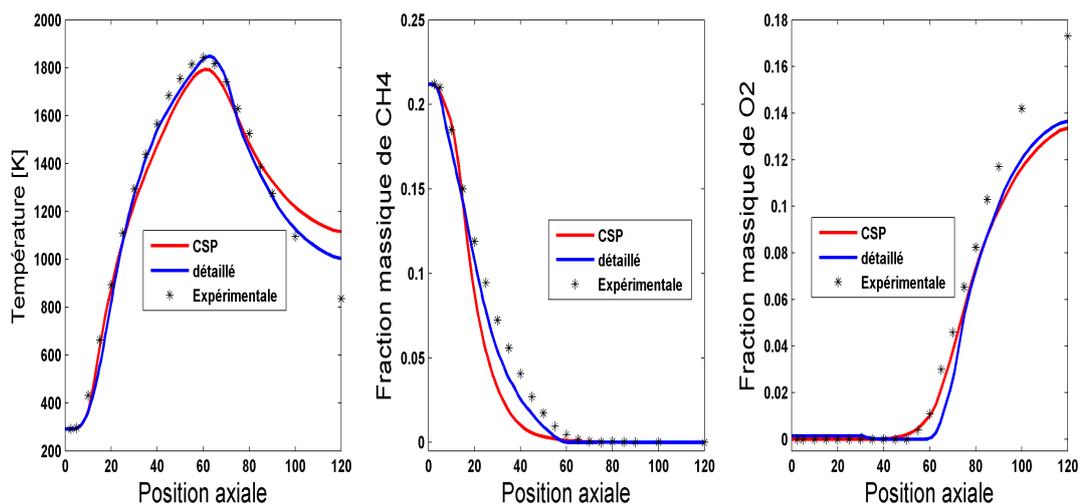


FIGURE 3.10 – Profil axial de la température et des fractions massiques moyennes des espèces CH₄, O₂. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FULL, couleur bleu).

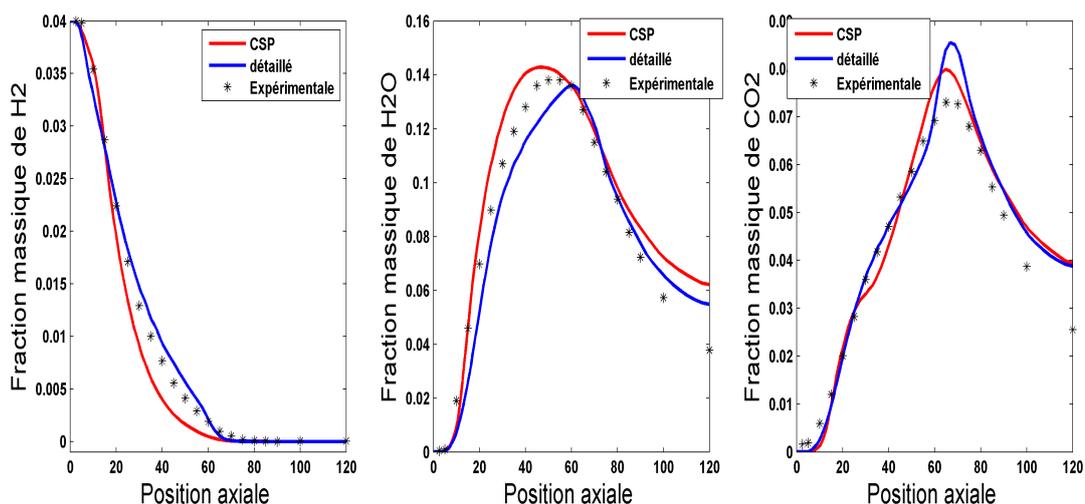


FIGURE 3.11 – Profil axial des fractions massiques moyennes des espèces H₂, CO₂ et H₂O. Expérimentale (en pointillé), mécanisme réduit (CSP, couleur rouge), mécanisme détaillé (FULL, couleur bleu).

La distribution de la température et des fractions massiques moyennes des espèces majoritaires est observée, suivant les trois positions radiales choisies et le long de l'axe central, sont en bon accord avec les données expérimentales tant pour le mécanisme squelettique de Yang et Pope, que pour le mécanisme réduit de ce dernier par la méthode CSP. L'observation faite sur l'évolution radiale et axiale de la température permet de dire que les calculs donnent lieu à un bon épanouissement des largeurs des profils, ce qui s'expliquerait par la présence, dans cette zone, de gradients de densité

et de vitesses correctement calculés. Par ailleurs, les maximums de températures sont également bien estimés, même si on observe un léger gap de discordance entre ceux calculés par le mécanisme squelettique et ceux calculés par le mécanisme réduit. Le mécanisme réduit étant légèrement modéré, induit donc les crêtes de température légèrement inférieure à ceux du mécanisme détaillé, mais reste en très bon accord avec l'expérimentale. Les distributions radiales de la fraction massique moyenne de O₂ sont illustrées par la figure 3.6. Pour celle-ci, une très bonne concordance entre les calculs des différents mécanismes et les données expérimentales est notée. Pour ce qui est des résultats des fractions massiques de CO₂, et de H₂O, les remarques constatées dans les cas des profils radiaux et axiaux de température restent valables ici. En ce qui concerne le CH₄ et le H₂, les calculs estiment bien leurs fractions massiques moyennes pour les positions allant de $X/D=5$ à $X/D=20$.

Cependant, les températures maximales sont sous-estimées d'environ 135 à 238 K suivant l'axe radial et d'environ 55 K suivant l'axe central, par le schéma réduit, comme le montrent les Figures 3.4 et 3.10. Les résultats de simulation confirment que les mécanismes détaillés sont généralement plus précis dans la description des interactions turbulence-chimie au fur et à mesure que la flamme évolue, alors que le mécanisme réduit est insuffisant pour prédire certaines espèces. Le temps de convergence des simulations avec le mécanisme réduit est inférieur à celui des simulations effectuées avec le mécanisme détaillé. Avec le mécanisme réduit à l'aide de la méthode CSP [49], le temps d'exécution des calculs par itération est en moyenne de 0,53s, alors qu'avec le mécanisme de Yang et Pope [48], le temps d'exécution par itération est d'environ 1,76s, donc 3,32 fois plus élevé. En général, il a fallu prendre environ 8 jours avec le mécanisme détaillé et 2 à 3 jours avec le mécanisme réduit, pour que les simulations numériques soient statistiquement convergentes. Cette étude a fait l'objet d'une publication dans le journal JERT (Journal of Energy Resources Technology-Transactions of the ASME) en 2018 [49].

Une étude supplémentaire a été menée pour évaluer la table de délais d'ignition du mécanisme réduit.

3.3.2 Validation de la table de délais d'ignition du mécanisme réduit par la méthode CSP avec le modèle PSR.

Cette sous-section est réservée à la validation de la table des délais d'ignition du mécanisme réduit par la méthode CSP avec le modèle PSR. Dans un premier temps nous avons calculé des tables de délais d'ignition à partir de trois mécanismes (GRI 3.0, Yang et Pope et le mécanisme réduit). Les valeurs de ces tables sont comparées dans l'objectif de montrer que la table de délais d'ignition calculer à partir du mécanisme réduit peut permettre d'étudier les mêmes phénomènes physico-chimiques que les mécanismes détaillés. La figure 3.12 donne quelques courbes de délais d'ignition obtenues dans le cas de la simulation d'une flamme de diffusion turbulente CH₄/H₂/N₂ de "type DLR flame A" en fixant la fraction moyenne de mélange et la fraction massique d'oxygène. Ces courbes ont deux branches, représentant la région riche et pauvre. Un bon accord de ces branches est observé entre les trois mécanismes, car la forme en U est obtenue.

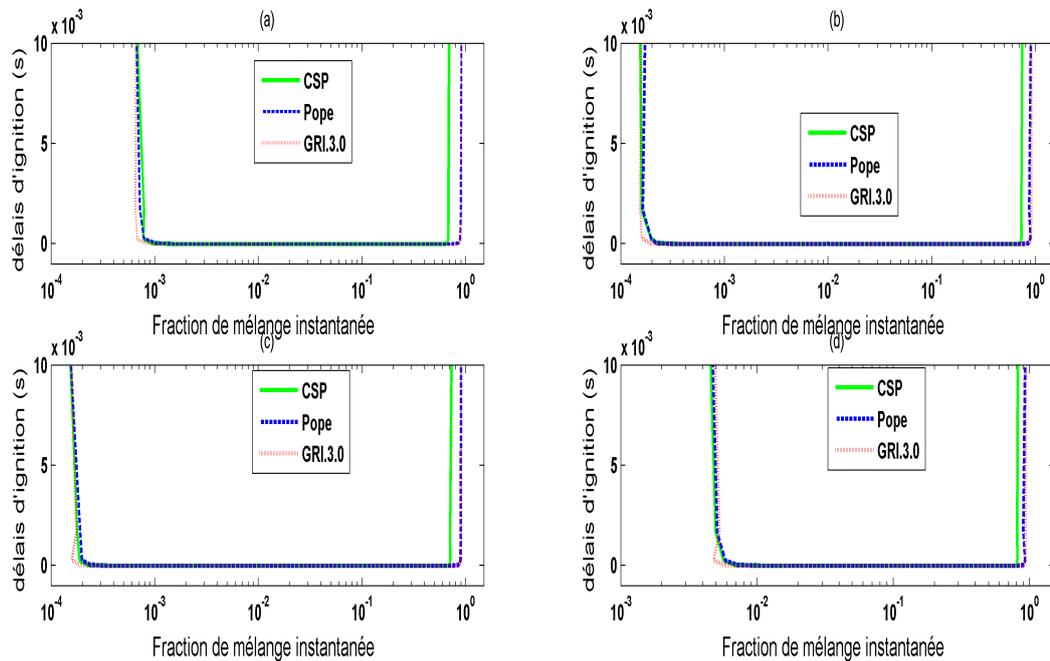


FIGURE 3.12 – évolution des délais d'ignitions; (a) ($\tilde{\phi} = 0.04222$, $\tilde{Y}_{O_2} = 0.150$); (b) ($\tilde{\phi} = 0.01$, $\tilde{Y}_{O_2} = 0.05$); (C) ($\tilde{\phi} = 0.3$, $\tilde{Y}_{O_2} = 0.05$); mécanisme (CSP, ligne, violet), Yang et al (Pope, ligne points, bleu), mécanisme (GRI 3.0, carré points ligne, rouge).

Dans cette sous-section, les résultats de simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente sont présentés. Cette simulation est faite avec les mêmes conditions aux

limites que l'étude précédente (dans la configuration d'une flamme de diffusion turbulente de la flamme A), à la seule différence que le Modèle Intermittent Lagrangien (MIL) est utilisé ici comme modèle de combustion turbulente. Le choix de MIL est motivé par le fait que le calcul du terme source dans l'équation de transport des espèces nécessite la table de délais d'ignition. Cette table est calculée à partir du mécanisme détaillé. Ici, l'intérêt principale est de valider les délais d'ignition du mécanisme réduit par notre approche de la méthode "computational Singular Perturbation" (CSP). Cette table permet également d'étudier le délai d'inflammation et le taux-d'inflammation dans la chambre de combustion.

3.3.3 Simulation numérique d'une flamme de diffusion turbulente de type "DRL-Flame A" avec le modèle MIL.

Dans cette sous-section, les résultats de simulations numériques d'une flamme de diffusion turbulente avec trois mécanismes de cinétiques chimiques (GRI.3.0, Yang et Pope et le mécanisme réduit par la méthode CSP) sont présentés. Ces simulations sont réalisées dans le but de montrer que le mécanisme réduit peut bien être utilisé dans les études impliquant la table de délais d'ignition d'un mécanisme détaillé dans les code CFD. $k-\varepsilon$ et MIL sont respectivement le modèle de turbulence et de combustion turbulente. Le choix de MIL est motivé par le fait que le calcul du terme source dans l'équation de transport des espèces nécessite la table de délais d'ignition. Cette table est calculée à partir du mécanisme détaillé. La configuration est celle de la flamme de type "DLR-Flame A" présentée plus haut. Dans ce travail, le taux de dissipation scalaire présent dans l'équation de la variance est évalué de deux façons ; d'abord par le modèle algébrique et puis par l'équation de transport.

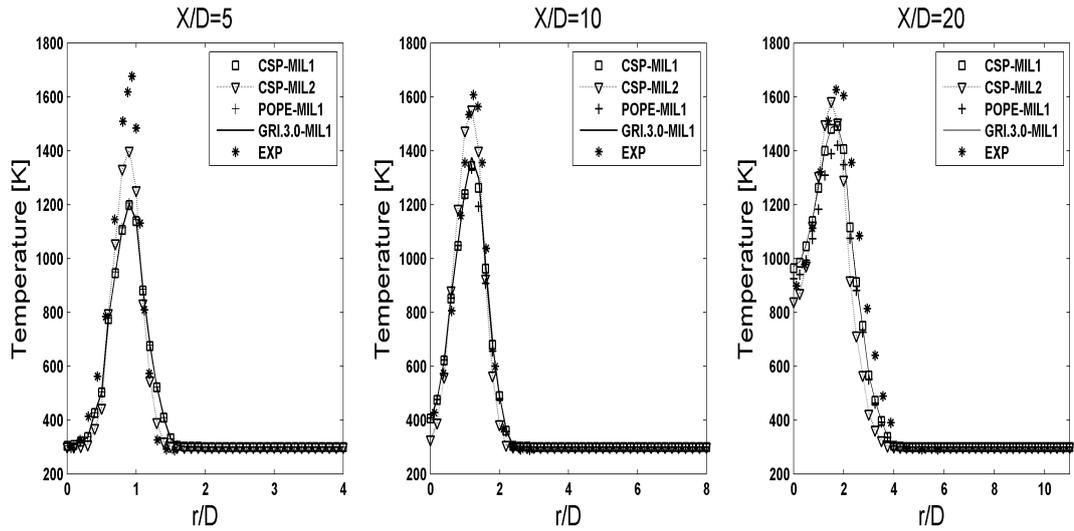


FIGURE 3.13 – Profil radial de la température (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne), (Pope, symbol d'addition), (Exp = données expérimentales, pointillés)

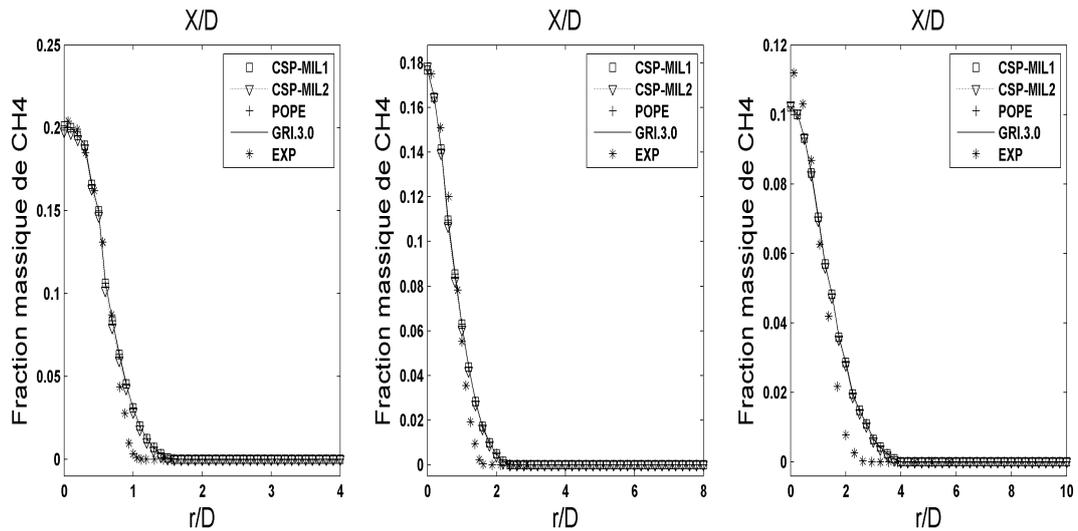


FIGURE 3.14 – profil radial de la fraction massique de CH4 (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne), (Pope, symbol d'addition), (Exp = données expérimentales, pointillés)

Pour le faire, nous avons calculé trois tables de délais d'ignition à partir des trois mécanismes, à savoir GRI 3.0, Yang et Pope, et le mécanisme réduit par la méthode CSP (Figure 3.12). Une première comparaison est faite entre ces trois mécanismes en fixant la fraction moyenne de mélange et la fraction massique moyenne de l'oxygène. Par la suite, ces tables sont exploitées pour la simulation d'une flamme de diffusion turbulente CH₄/H₂/N₂ dans les mêmes conditions initiales que la simulation numérique précédente, et les résultats sont bien évidemment comparés aux données expérimentales de

la flamme (DLR-Flame A) du laboratoire Sandia.

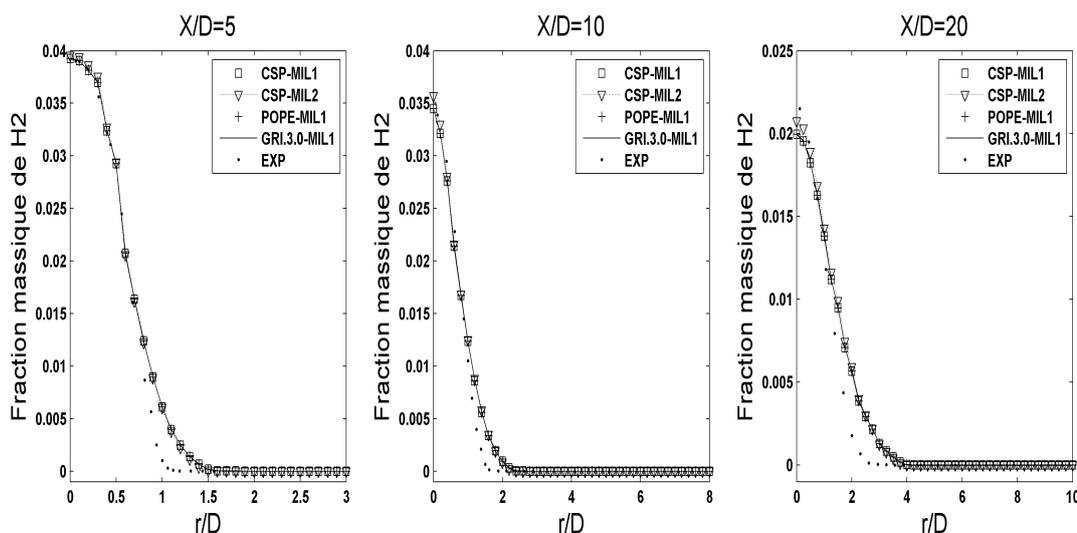


FIGURE 3.15 – profil radial de la fraction massique de H₂ (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)

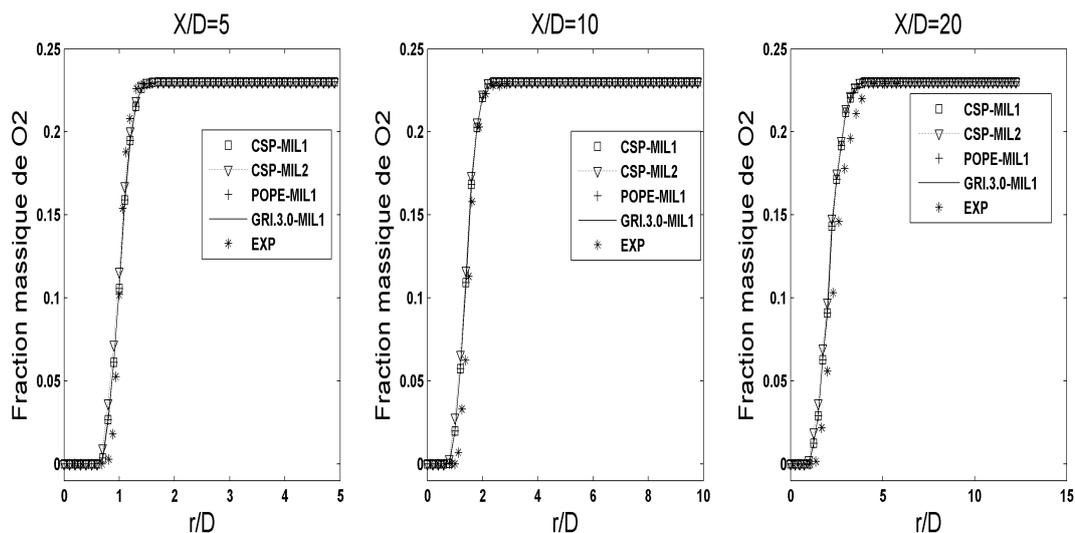


FIGURE 3.16 – profil radial de la fraction massique de O₂ (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)

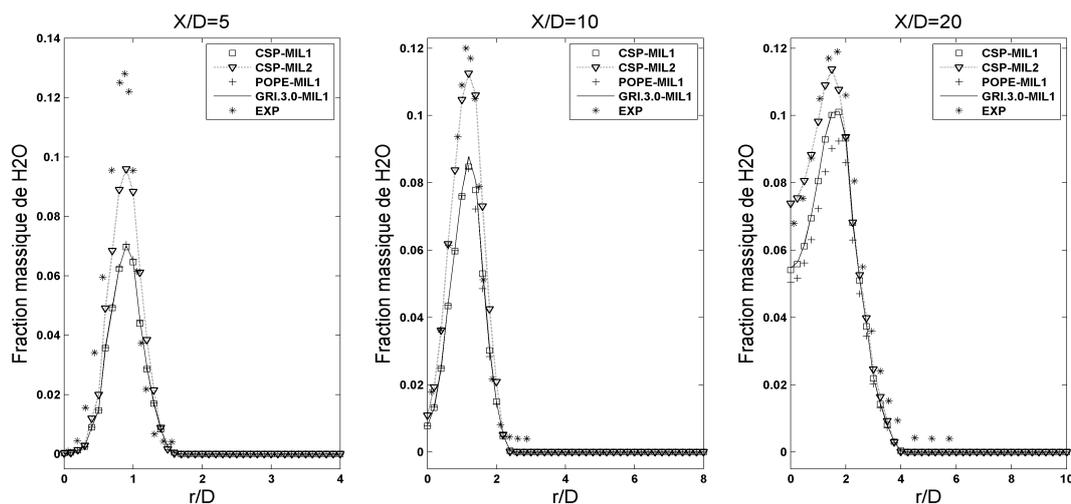


FIGURE 3.17 – profil radial de la fraction massique de H₂O (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)

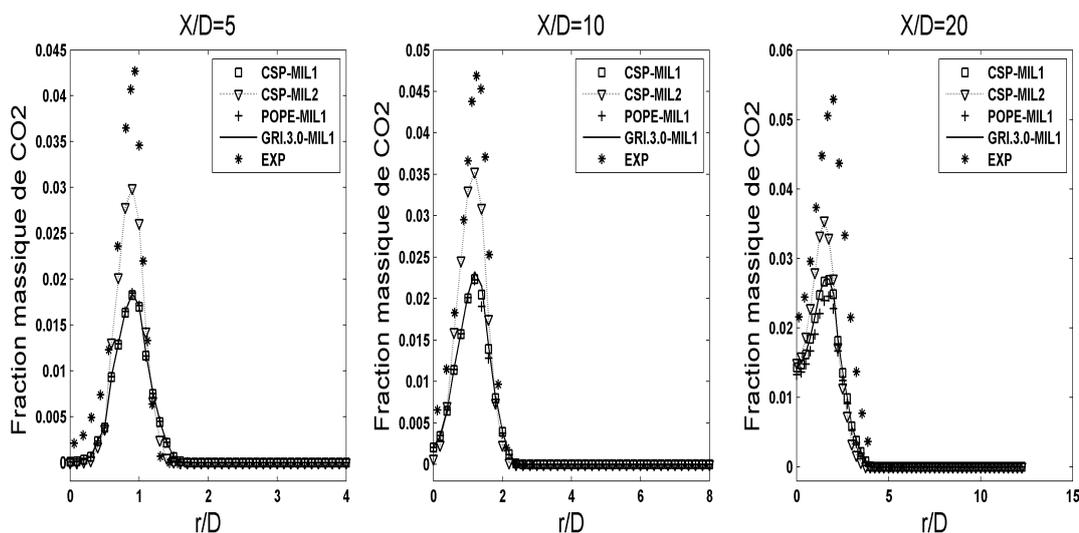


FIGURE 3.18 – profil radial de la fraction massique de CO₂ (CSP-MIL1 = modèle algébrique, carré), (CSP-MIL2= équation de transport, ligne triangle), (GRI 3.0, ligne),(Pope, symbol d'addition),(Exp = données expérimentales, pointillés)

Les figures 3.13 à 3.18, présentent l'évolution de la température moyenne et des fractions massiques moyennes des espèces majoritaires des trois mécanismes (GRI 3.0, Yang et Poape, et le mécanisme réduit). Les résultats sont présentés suivant les profils radiaux, à trois positions $X/D = 5, 10$ et 20 . Les profils radiaux de CH₄ (Figure 3.14), O₂ (Figure 3.15) et H₂ (Fig 3.16) sont en bon accord avec les données expérimentales sur toutes les positions. Concernant la température (Figure 3.13), H₂O (Figure 3.17) et CO₂ (Figure 3.18), les résultats sont similaires entre les positions $X/D = 5$ et 10 pour les différents

mécanismes, mais on observe un léger gap entre le mécanisme de Yang et Pope et le mécanisme réduit. Les figures 3.13, 3.17 et 3.18, montrent l'effet du modèle utilisé pour calculer le taux de dissipation scalaire de la variance sur la température et les produits de combustion H₂O et CO₂. Les résultats utilisant l'équation de transport sont plus proches des données expérimentales, comparés au modèle algébrique. Le profil de la fraction massique de CO₂ est très sous-estimé à toutes positions pour les deux modèles, ceci est attribué par le fait que le CO est aussi produit au cours de la combustion ; or le modèle ne prend qu'une seule réaction globale qui n'inclut pas l'espèce chimique CO. Cette étude a fait l'objet d'une deuxième publication dans le journal JERT (Journal of Energy Resources Technology-Transactions of the ASME) en 2019 [86].

3.3.4 Etude comparative des modèles de combustion PaSR et MIL.

Dans cette partie, les résultats des simulations numériques utilisant les modèles de combustion MIL, PaSR et les données expérimentales du laboratoire Sandia sont comparés. Les résultats sont présentés suivant les profils radiaux, à trois positions $X/D = 5, 10$ et 20 . Les figures 3.19 à 3.24 montrent les résultats de simulations numériques de la température moyenne et les fractions massiques moyennes des espèces majoritaires CH₄, H₂, O₂, H₂O et CO₂, respectivement. La simulation de cette flamme est faite avec le mécanisme réduit par la méthode CSP. Les courbes en bleu, donnent des résultats de simulation numérique utilisant le modèle de combustion PaSR, ce modèle prend en compte le mécanisme détaillé incorporé dans le code CFD et les courbes en rouge sont des résultats utilisant le modèle de combustion MIL, ne pouvant prendre en compte qu'une seule réaction globale et le terme source dans l'équation de transport des espèces est évalué à partir de la table de délais d'ignition calculée avec le mécanisme réduit par la méthode CSP.

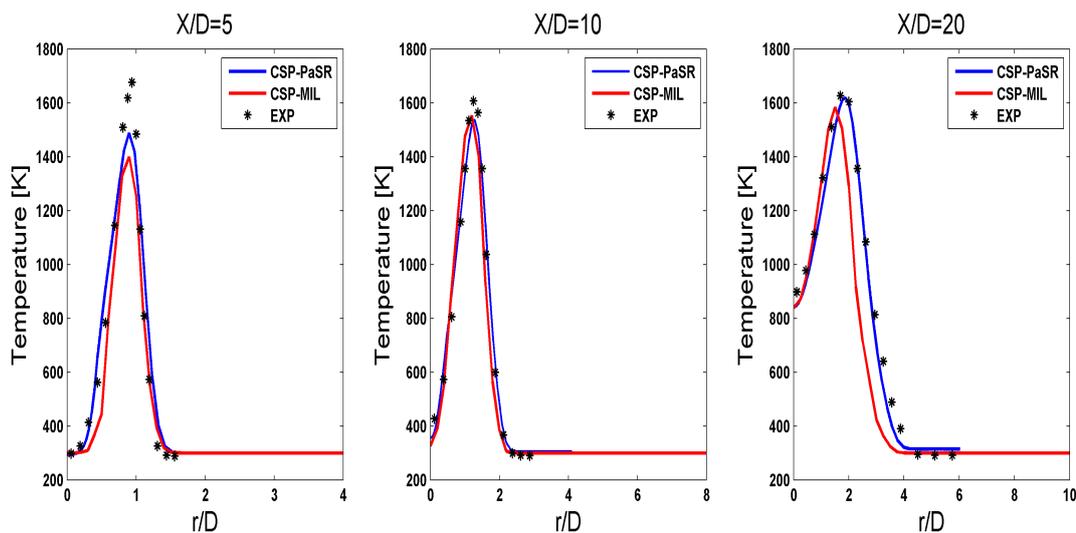


FIGURE 3.19 – profil radial de la température (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)

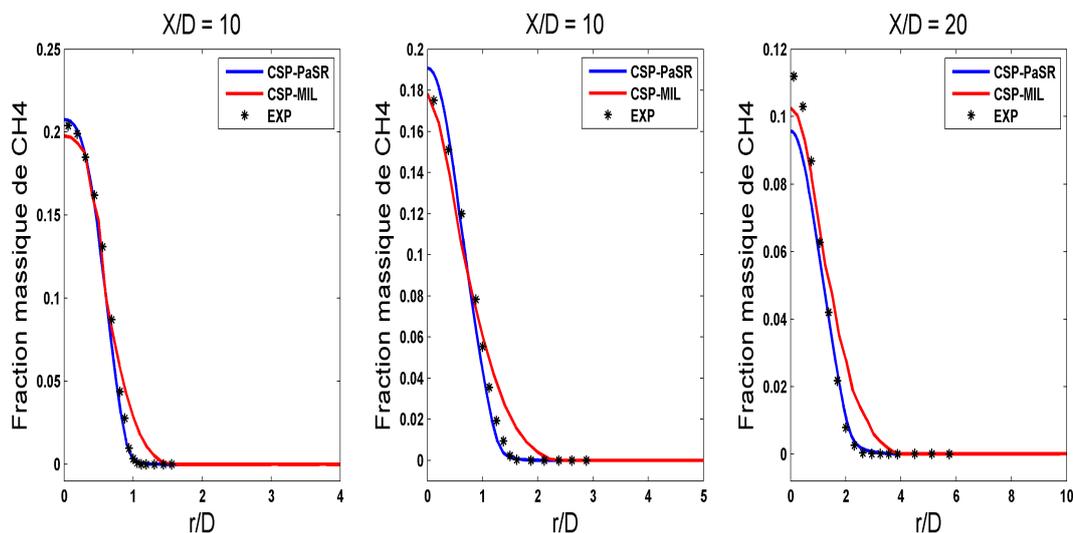


FIGURE 3.20 – profil radial de la fraction massique de CH_4 (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)

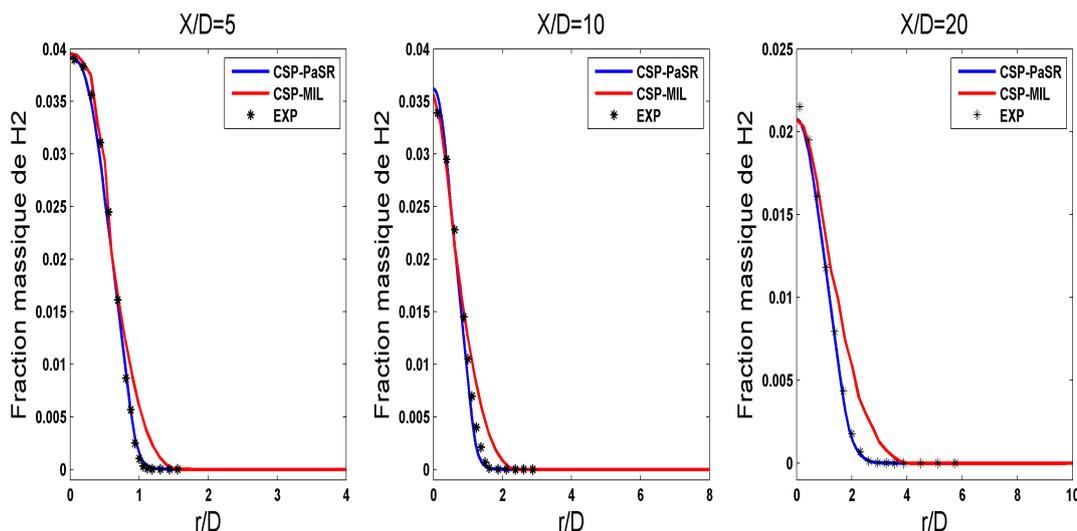


FIGURE 3.21 – profil radial de la fraction massique de H2 (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)

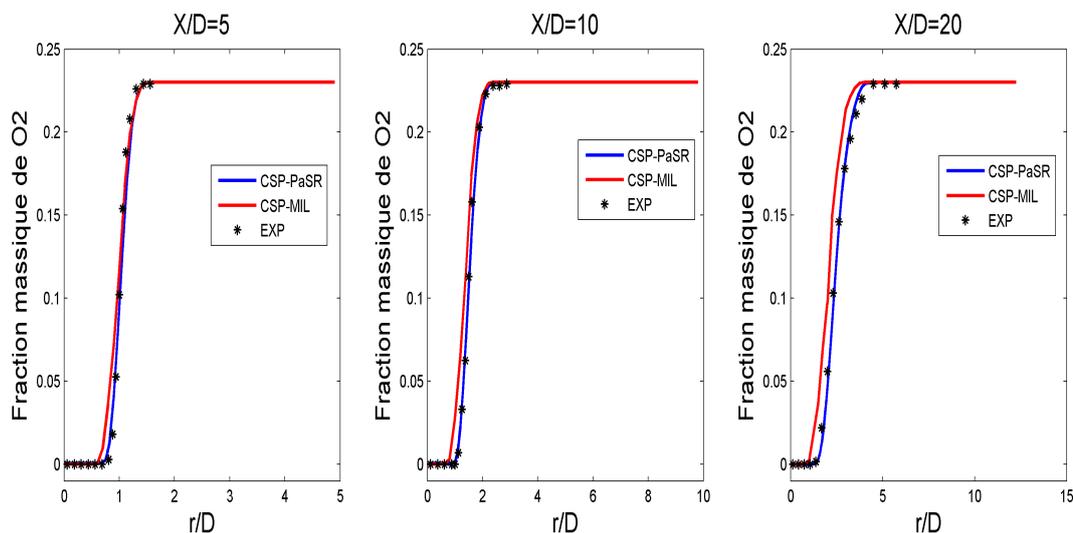


FIGURE 3.22 – profil radial de la fraction massique de O2 (CSP-PaSR = mécanisme réduit), (CSP-MIL= mécanisme réduit), (Exp = données expérimentales, pointillés)

Les profils radiaux des réactifs CH₄ (Figure 3.20), H₂ (Figure 3.21), O₂ (Figure 3.22) sont en parfait accord avec les deux modèles de combustion et les données expérimentales. La figure 3.13 donne l'évolution de la température en trois positions, on observe un bon accord entre les deux modèles et les données expérimentales à la position $X/D = 20$, à $X/D < 20$, on observe que les deux modèles sont sous-estimés à la position $X/D = 5$, cet écart peut être justifiée par le fait que la réduction des mécanismes de cinétiques est accompagnée par la perte des informations.

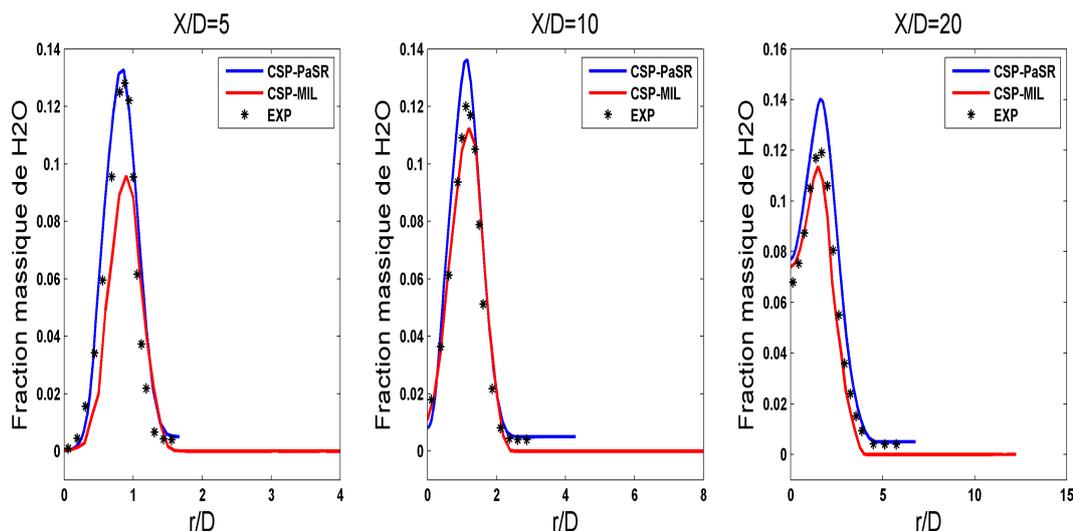


FIGURE 3.23 – profil radial de la fraction massique de H₂O (CSP-PaSR = mécanisme réduit, line), (CSP-MIL= mécanisme réduit, carré), (Exp = données expérimentales, pointillés)

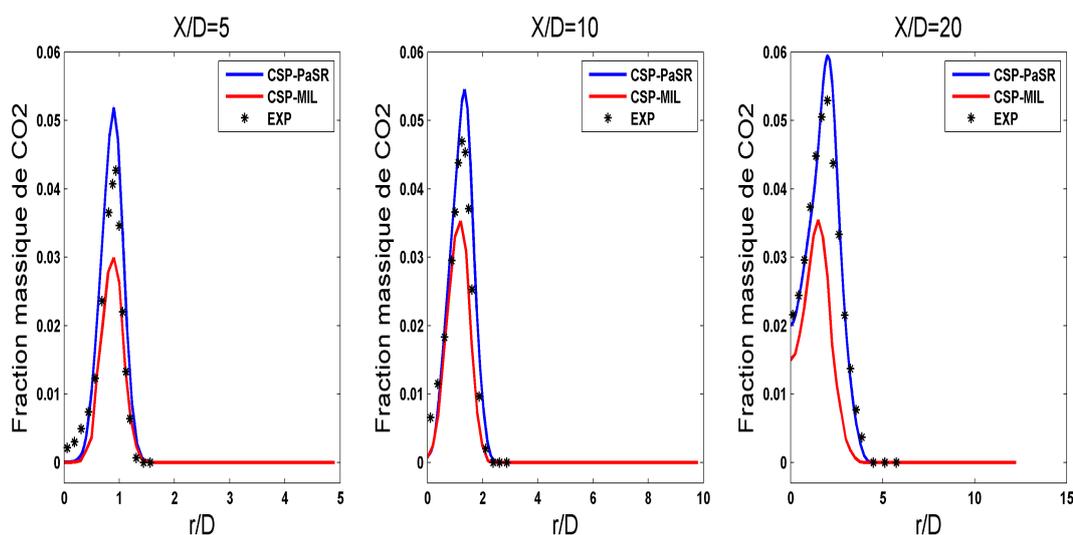


FIGURE 3.24 – profil radial de la fraction massique de CO₂ (CSP-PaSR = mécanisme réduit, line), (CSP-MIL= mécanisme réduit, carré), (Exp = données expérimentales, pointillés)

D'une façon générale, on observe un bon accord entre les résultats numériques des deux modèles de combustion et les données expérimentales. Cependant, on observe que l'épanouissement radial des profils de la fraction massique de CO₂ utilisant le modèle de combustion MIL est très sous-estimée à toutes positions, comparée aux données utilisant le modèle de combustion PaSR et les données expérimentales. Ceci est justifié par le fait que l'espèce chimique CO est aussi produit majoritairement au cours de la combustion du méthane, mais il n'est pas prédit par le mécanisme de réaction globale

pris en compte par le modèle MIL.

La simulation numérique prenant en compte le mécanisme réduit (22 réactions réversibles) dans le code CFD OpenFOAM prend environ 2 à 3 jours de temps de calcul pour que les résultats convergent, alors que celle prenant en compte une seule réaction globale prend en générale moins de 10 heures de temps de simulation, y compris le temps de calcul de délais d'ignition. Au regard des résultats, le modèle PaSR est plus proche des données expérimentales malgré que son temps de convergence est largement supérieur à celui utilisant le modèle MIL.

3.4 Résultats de la combustion numérique du biogaz produit à partir de plusieurs sources.

Cette sous-section présente les résultats de simulations numériques d'une flamme de diffusion turbulente du biogaz produit à partir de plusieurs sources de matières premières à savoir : les Ordures Ménagères (OM) par Léa Sigot [52], lisier de porcs [54] et la biomasse végétale par POULLEAU. J [2] (Tableau 1.4). La configuration utilisée pour cette simulation numérique reste celle d'une flamme de diffusion turbulente de type "DLR Flame A" présentée au paragraphe 3.3 de ce chapitre, à la seule différence que la composition chimique du biogaz est différente à celle de la flamme de type "DRL Flame A". Le tableau 1.4 du chapitre 1 donne les caractéristiques chimiques (fractions molaires en volume) utilisées pour la simulation de ces biogaz. Comme dans la simulation numérique de la flamme de type "DLR Flame-A", l'ajout du d'hydrogène est utilisé pour la stabilisation de la flamme. Le pourcentage du d'hydrogène étant faible dans la composition chimique du biogaz, nous l'avons fixé à 4% afin de stabiliser la flamme du biogaz produit à base des ordures ménagères et de la biomasse végétale en diminuant la fraction molaire de CO₂ ou N₂ puisqu'elles sont considérées comme des espèces inertes.

La figure 3.25 montre les contours des températures des différents biogaz. Nous constatons que la longueur (axe central) et la largeur (rayon) de la flamme changent en fonction de la teneur en méthane (CH₄). Au regard de ces contours nous pouvons dire

que plus le biogaz est riche en méthane, plus sa combustion dégage de la chaleur. Résultat évident, ce qui montre que le mécanisme réduit par notre approche CSP peut permettre de simuler la combustion numérique du biogaz.

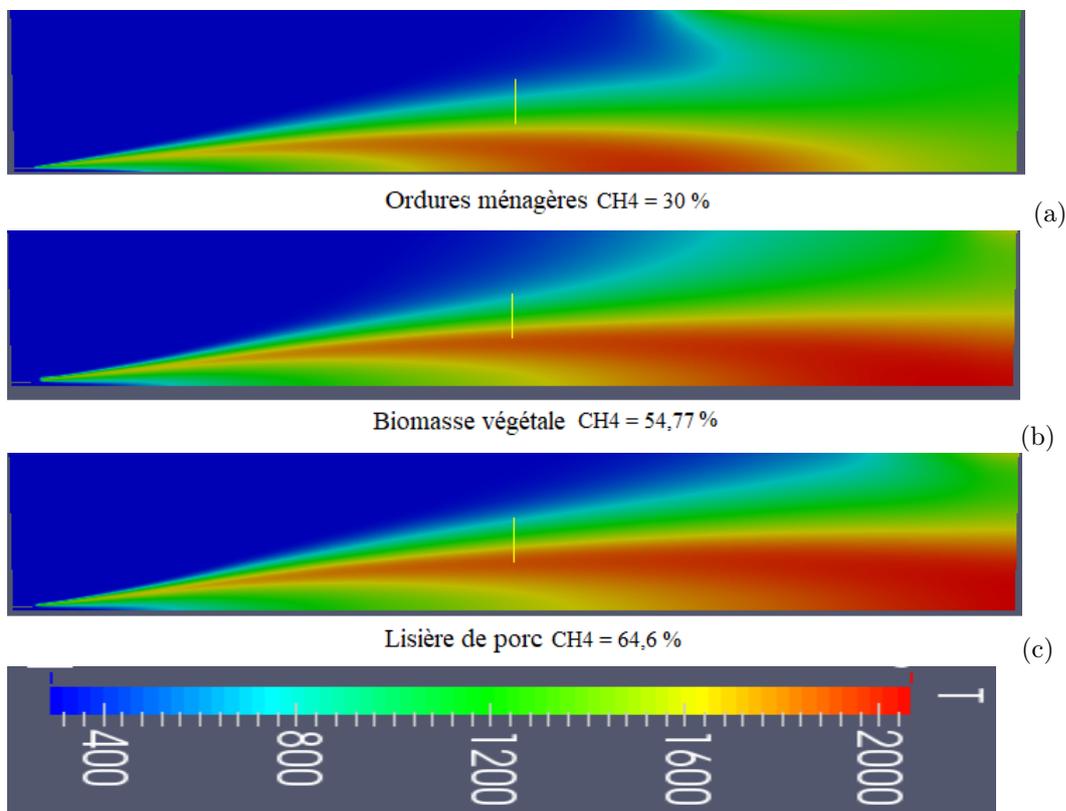


FIGURE 3.25 – Contour de la température des différents bio gaz

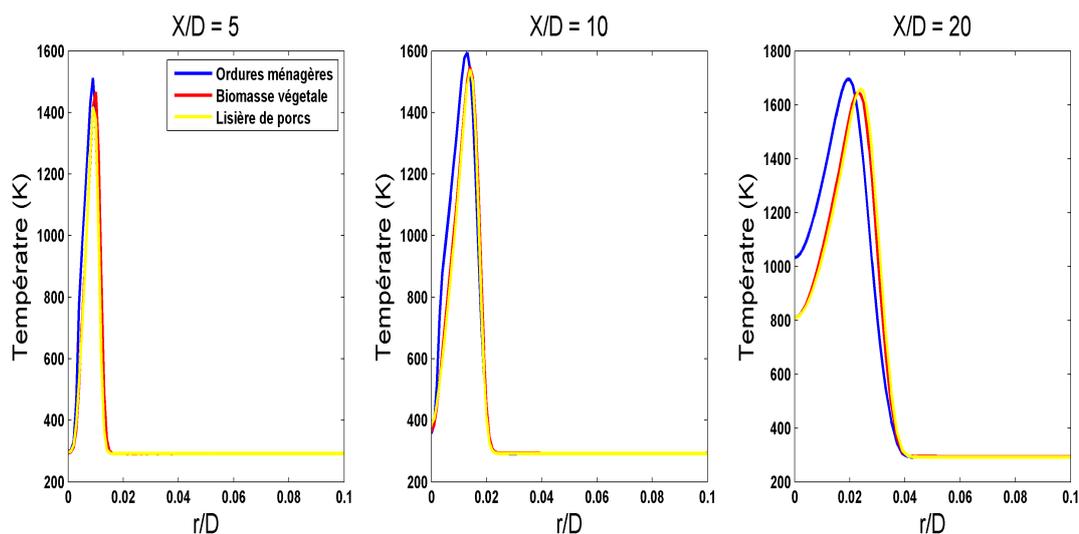


FIGURE 3.26 – Profil radial de la température du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

Pour l'élevage porcin l'auteur obtient une teneur en CH₄ légèrement plus faible que celle

attendue (64,6% pour 66-69%) ainsi que pour CO₂ (24,7% pour 30-34%). La raison en est la teneur en H₂ assez forte 5,6% et 5,63% en N₂ [54]. La composition chimique du biogaz produit à partir des ordures ménagères est : 30% en CH₄, 22 % en CO₂, 9,6% en O₂, 34,4 % en N₂ et 4% en H₂ [52], et celui de la biomasse végétale est 54,77% en CH₄, 41,96 % en CO₂, 0,375% en O₂, et 4% de H₂ [2]. La figure 3.26 donne l'évolution de la température suivant trois positions radiales $X/D = 5, 10$ et 20 . On s'attendait à avoir des pics de températures par ordre croissant (ordures ménagères, biomasse végétale, lisière de porcs) tout simplement parce que les pourcentages en méthane (CH₄) sont respectivement (30%, 54,77% et 64,6%). Les figures 3.25 b et c montrent que la flamme sort de la chambre de combustion, il est fort probable que la position x où la température est maximale soit à l'extérieur de la chambre de combustion.

Les figures 3.27 à 3.34 donnent respectivement les profils radiaux des fractions massiques moyennes des espèces CH₄, H₂, O₂, H₂O, CO₂, CO, OH et CH₃ suivant les positions $X/D = 5, 10$ et 20 . D'une façon générale, on observe une différence entre les courbes des différents biogaz qui s'explique par le fait que la composition chimique du biogaz change en fonction du substrat et des conditions de fermentation.

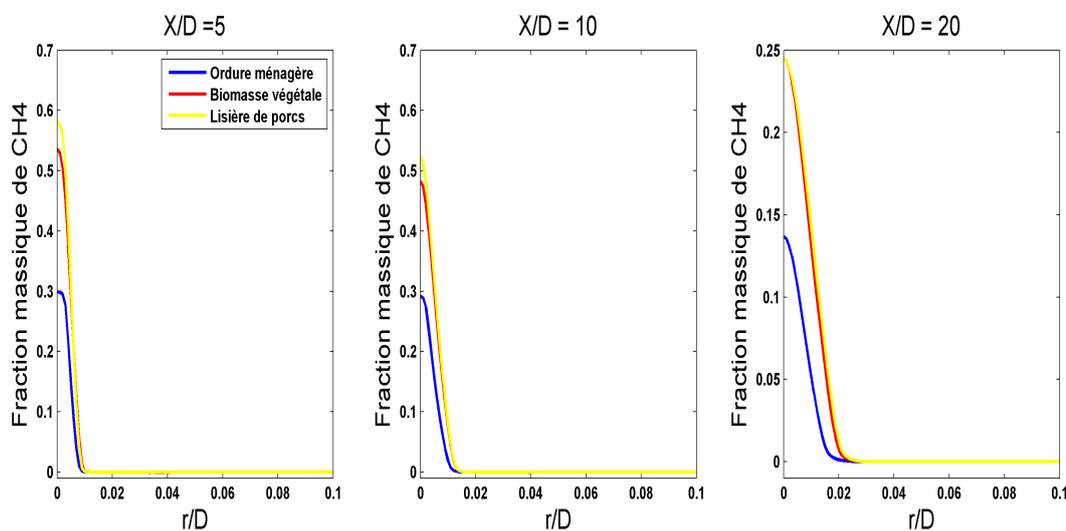


FIGURE 3.27 – Profil radial de la fraction massique de CH₄ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordure ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

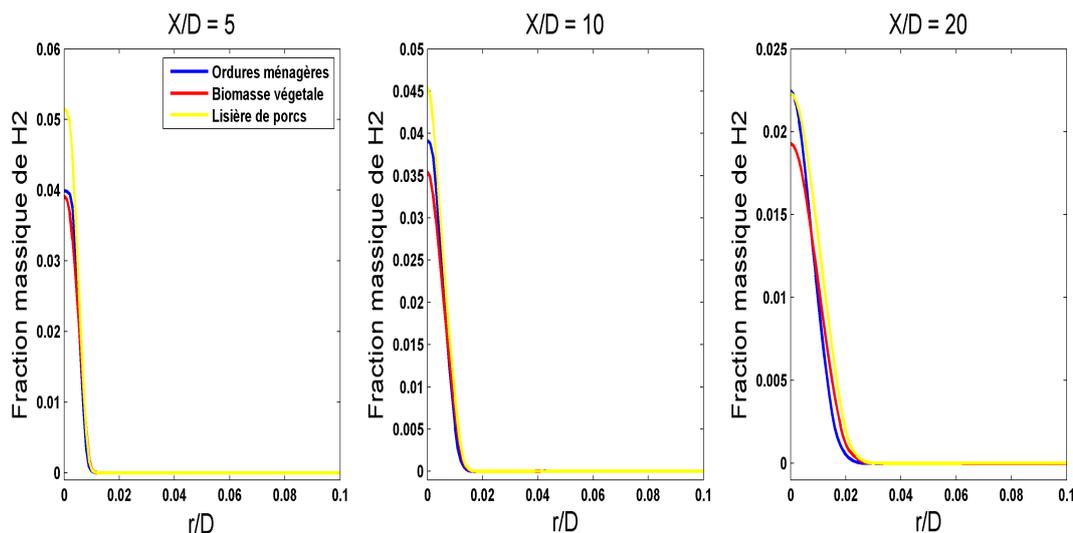


FIGURE 3.28 – Profil radial de la fraction massique de H₂ du biogaz produit à partir des différentes sources Ordures ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

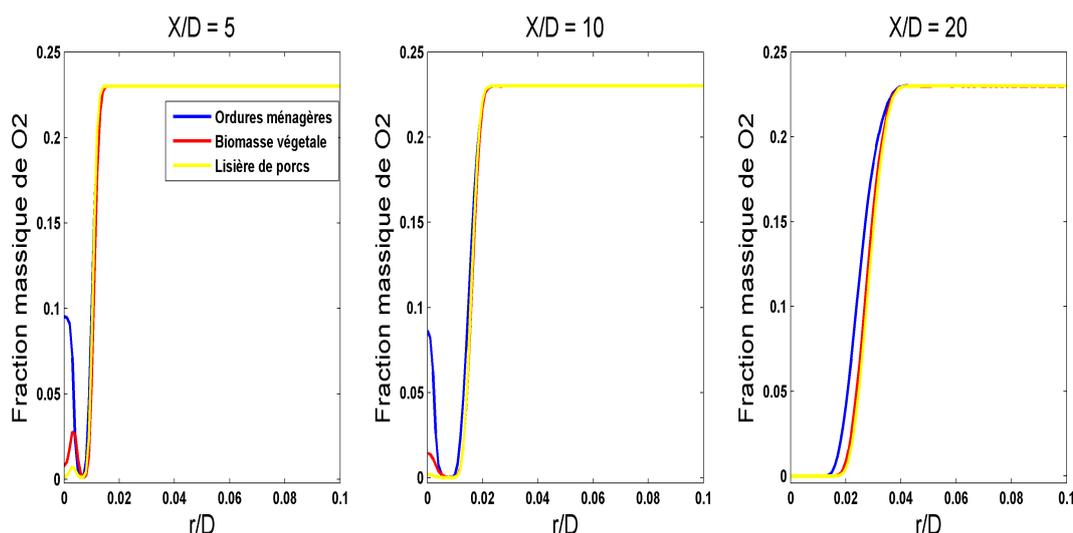


FIGURE 3.29 – Profil radial de la fraction massique de O₂ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagère (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

La figure 3.27 donne le profil radial en trois positions $X/D = 5, 10,$ et 20 de la fraction massique moyenne de l'espèce chimique O₂ des différents biogaz étudiés dans ce travail, on observe dans un premier temps une décroissance des courbes qui s'explique par une consommation de cette espèce chimique, or certains biogaz contiennent un peu de teneur en O₂, ici O₂ n'est pas considéré comme combustible ni comburant, mais comme espèce inerte. Il faut rappeler que dans ce travail nous simulons une flamme de diffusion turbulente où les combustibles sont CH₄ et H₂, le H₂ pour la stabilisation de

la flamme et les comburants sont O_2 et N_2 , le combustible et le comburant sont séparés avant d'entrer dans la chambre de combustion. Après consommation totale de l'espèce O_2 se trouvant dans le biogaz on observe que la courbe de l'espèce O_2 croit, elle reflète la réalité de l'évolution de O_2 pour une flamme de diffusion turbulente (Figure 3.6 et 3.22).

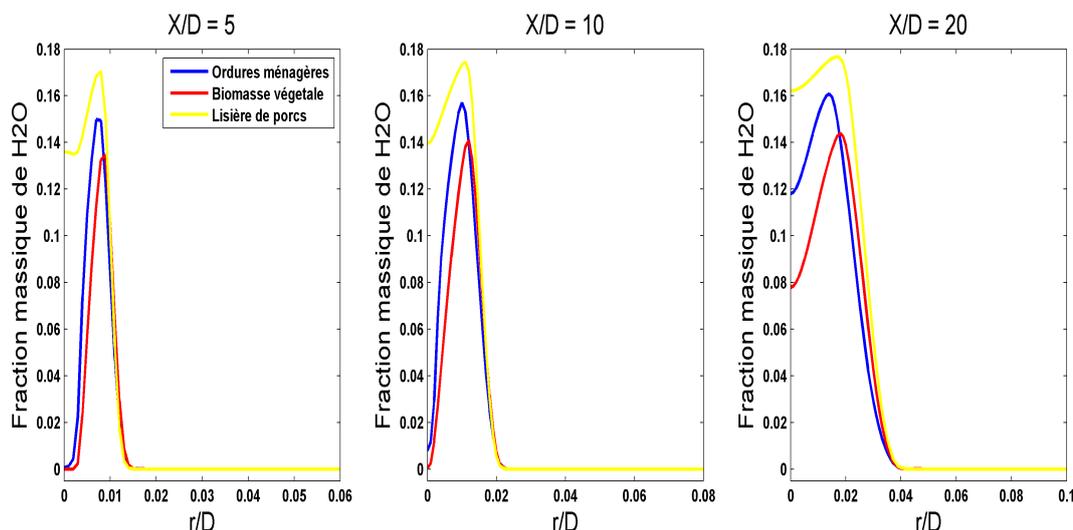


FIGURE 3.30 – Profil radial de la fraction massique de H₂O du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

La figure 3.30 nous donne le profil radial de la fraction massique moyenne de H₂O à trois positions $X/D = 5, 10$ et 20 . Les explications données à la figure 3.19 (profil radial de la température) sont également valables pour la figure 3.30, puisqu'en général l'espèce H₂O a le même profil que la température. Mais néanmoins on note une grande différence de profil entre les figures 3.26 et 3.30, le pic de la courbe (lisière de porcs) est supérieure à celui de la biomasse végétale (en rouge) et les ordures ménagères (en bleu), ceci s'explique par le fait que le biogaz produit avec la lisière de porcs contient plus de teneur en H₂O (13%) comparé au biogaz produit par les ordures ménagères et la biomasse végétale. Par contre, les conditions aux limites de la température des différents biogaz sont identiques.

Le biogaz est principalement composé de CH₄ et de CO₂ qui sont des gaz à effet de serre, la figure 3.31 donne le profil radial de l'espèce CO₂, on observe une décroissance des différentes courbes qui traduire une consommation de cette espèce chimique, ici

l'espèce chimique CO_2 est considérée comme espèce inerte comme N_2 , O_2 , H_2O . Cette décroissance au cours de la combustion augure une bonne chose pour la protection de l'environnement, puisque la quantité de CO_2 à la sortie de la chambre de combustion est largement inférieure à celle à l'entrée (Figure 3.36 (c), profil axial de l'espèce CO_2).

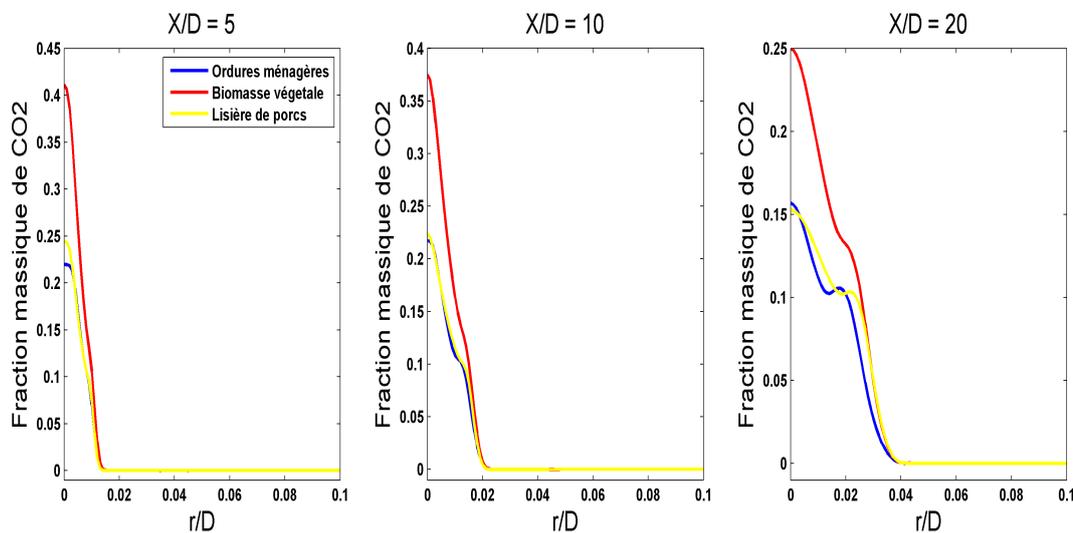


FIGURE 3.31 – Profil radial de la fraction massique de CO_2 du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

Les figures 3.32, 3.33 et 3.34 montrent respectivement les profils radiaux des fractions massiques moyennes des espèces CO , OH et CH_3 dites radicales, qui sont bien sélectionnées par le programme CSP comme radicaux-CSP, mais considérées comme espèces nécessaires, elles contribuent à la bonne compréhension des phénomènes physico-chimiques au cours de la combustion.

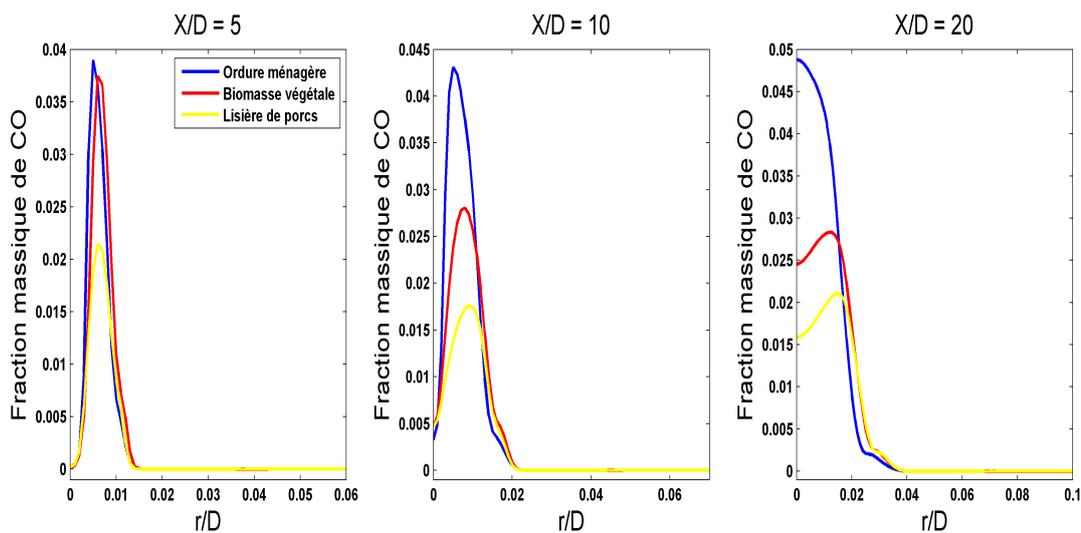


FIGURE 3.32 – Profil radial de la fraction massique de CO du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

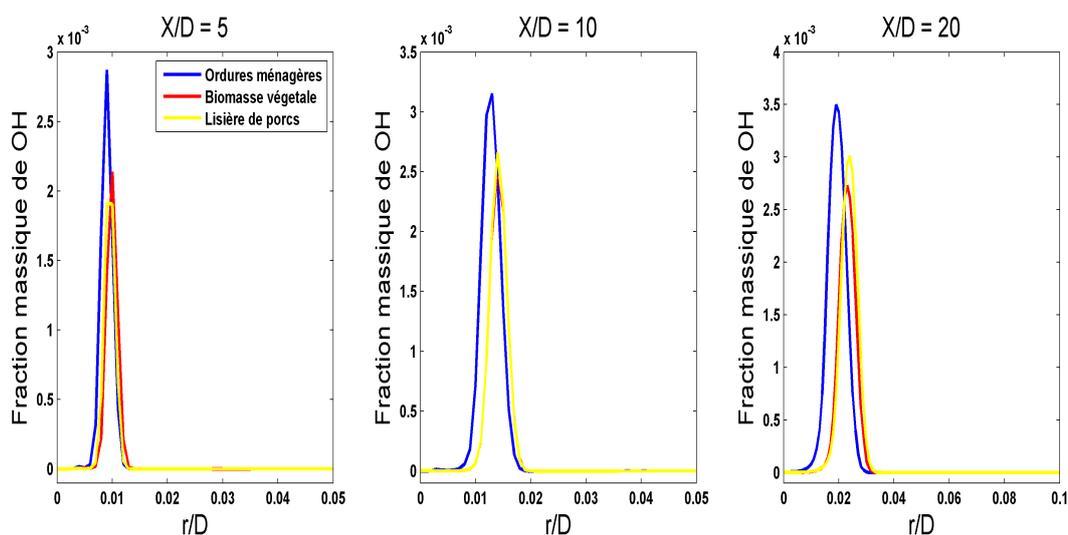


FIGURE 3.33 – Profil radial de la fraction massique de OH du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

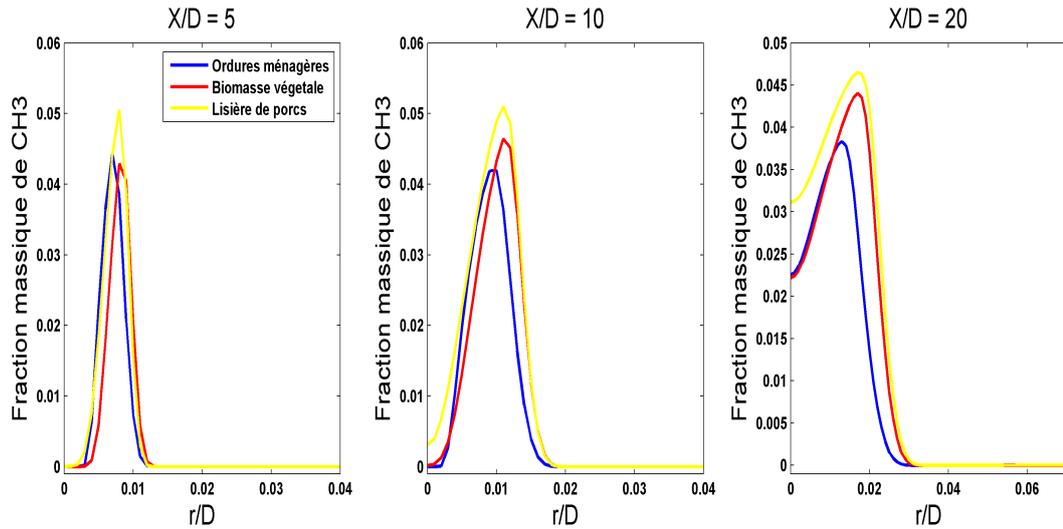


FIGURE 3.34 – Profil radial de la fraction massique de CH_3 du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

Les figures 3.35, 3.36 et 3.37 donnent les profils axiaux de la température et des fractions massiques moyennes des espèces chimiques majoritaires. La figure 3.35 (a) donne l'évolution de la température suivant le profil axial, notre attention est portée sur l'effet de la teneur du combustible (CH_4) sur la température (chaleur dégagée). Les courbes en bleu, rouge et jaune de la figure 3.35 (a) donne respectivement l'allure de la température de la combustion du biogaz produit à partir des ordures ménagères (30 % en CH_4), biomasse végétale (54,77% en CH_4) et le lisier de porc (64,6 % en CH_4). La courbe en bleu atteint son maximum ($T_{\max} = 2043,96 \text{ K}$) à la position $X = 0,63 \text{ m}$, ce qui revient à dire que la position où la température est maximale est dans chambre de combustion à 0,37 m de la sortie de la chambre de combustion, donc toute la flamme reste dans la chambre de combustion (Figure 3.25 (a)).

La courbe en rouge atteint son maximum ($T_{\max} = 2070,79 \text{ K}$) à la position $X = 0,95 \text{ m}$ presque à la sortie de la chambre de combustion, ici la hauteur de la flamme est supérieure à 1m d'où la flamme sort de la chambre de combustion (comme le montre la Figure 3.25 (b)).

La courbe en jaune reste croissante tout au long de l'axe central, prouve que la position où la température est maximale ne se trouve pas dans la chambre de combustion, donc ici la flamme sort de la chambre de combustion (comme le montre la Figure 3.25 (c)).

Au regard de l'interprétation des trois courbes de la figure 3.37 (a), on peut conclure que la chaleur dégagée au cours de la combustion du biogaz dépend fortement de la teneur en CH_4 , plus le pourcentage de CH_4 est élevé dans le biogaz, la combustion de ce dernier dégage de plus en plus la chaleur.

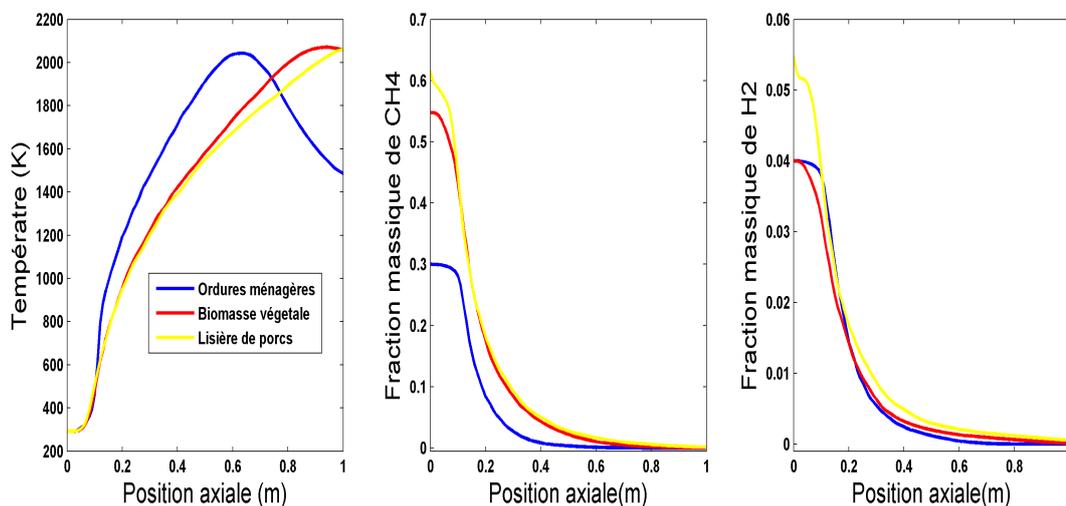


FIGURE 3.35 – Profil axial de la température et les fractions massiques CH_4 et H_2 du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

Les figures 3.35 (b) et (c) montrent les profils axiaux des combustibles CH_4 et H_2 , la décroissance des courbes traduit une consommation de ces combustibles qui en retour produit de la chaleur comme le montre la figure 3.35 (a).

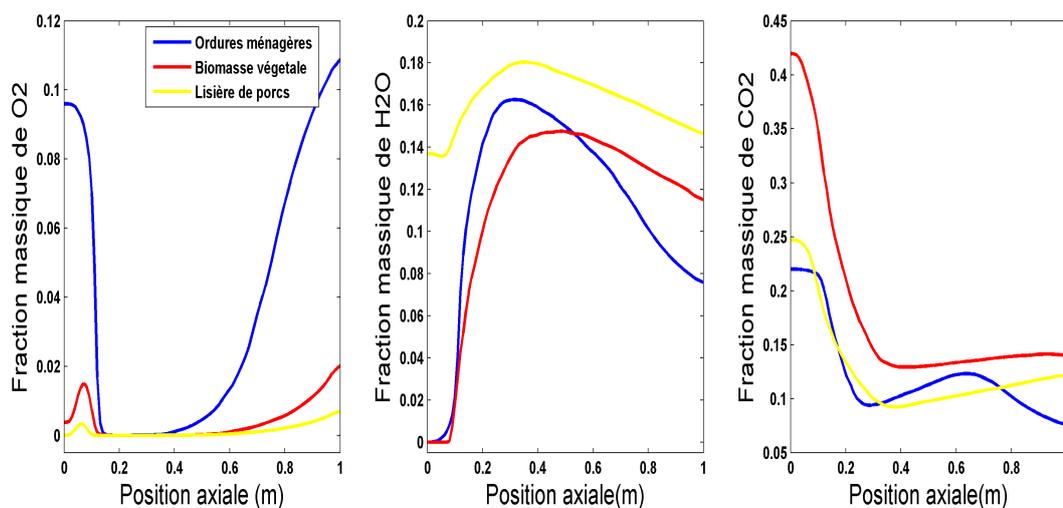


FIGURE 3.36 – Profil axial des fractions massiques O_2 , H_2O et CO_2 du biogaz produit à partir des différentes sources Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

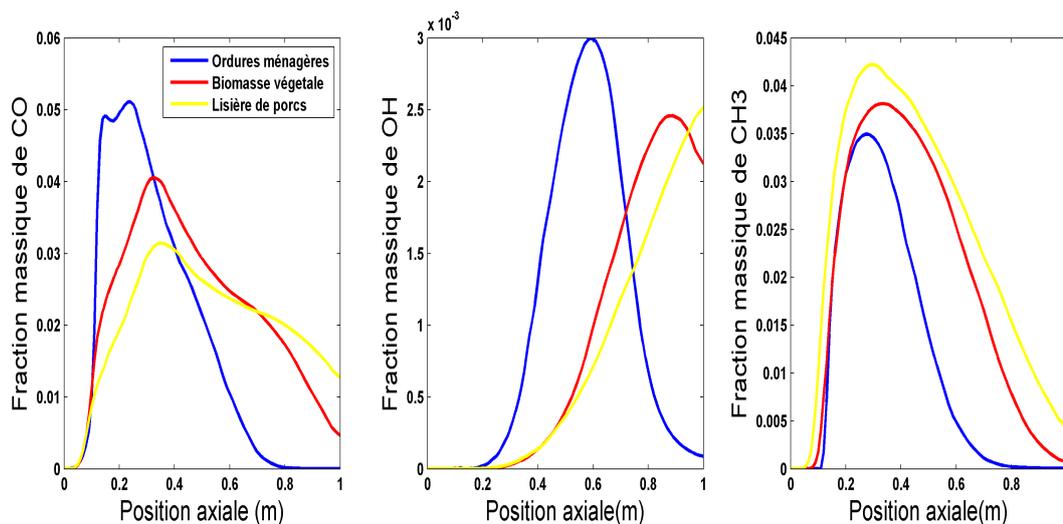


FIGURE 3.37 – Profil axial des fractions massiques CO, OH et CH₃ du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

Les figures 3.36 (c) et 3.37 (a) montrent respectivement les profils axiaux des fractions massiques moyennes des espèces CO₂ et CO des différents biogaz, qui sont des gaz néfastes pour l'environnement et à l'être humain, et donc nécessitent un contrôle au cours de la combustion des carburants pouvant les produire. Les courbes de la figure 3.36 (c) montrent l'évolution de la fraction massique moyenne de l'espèce CO₂ des différents biogaz simulés, les profils axiaux sont décroissants de l'entrée à la sortie de la chambre de combustion, preuve que la combustion du biogaz ne produit pas du dioxyde de carbone, par contre, elle consomme le peu qui se trouve dans le biogaz initial. La figure 3.37 (a) montre les profils axiaux de la fraction massique moyenne du monoxyde de carbone (CO) des différents biogaz étudiés, la courbe en bleu montre le profil axial de la fraction massique moyenne de CO du biogaz produit à partir des ordures ménagères, l'observation faite est que la combustion de ce biogaz ne laisse pas échapper le monoxyde de carbone dans l'environnement, par contre la combustion des biogaz produits à partir de la biomasse végétale et la lisière de porcs laisse échapper le monoxyde de carbone comme le montre les courbes en rouge et en jaune de la figure 3.37 (a). La conclusion qu'on peut tirer de cette observation est que tout dispositif donc la flamme sort de la chambre de combustion laisse échapper le monoxyde de carbone dans l'environnement.

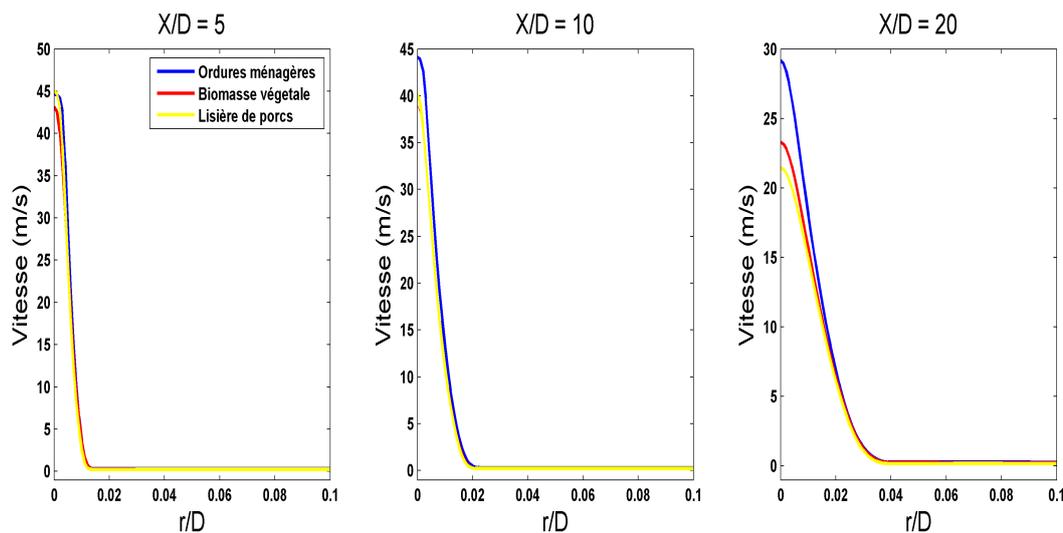


FIGURE 3.38 – Profil radial de la vitesse du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porcs (jaune).

Les observations faites sur les différents profils radiaux et axiaux montrant l'évolution des fractions massiques moyennes des espèces et de la température permettent de dire que les calculs donnent lieu à un bon épanouissement des largeurs des profils des différents biogaz étudiés, qui expliquerait la présence dans cette zone le gradient de la masse volumique (densité), de la température et des vitesses correctement calculées comme le montre les figure 3.38 et 3.39 qui donne respectivement les profils radiaux sur trois positions $X/D = 5, 10$ et 20 et les profils axiaux.

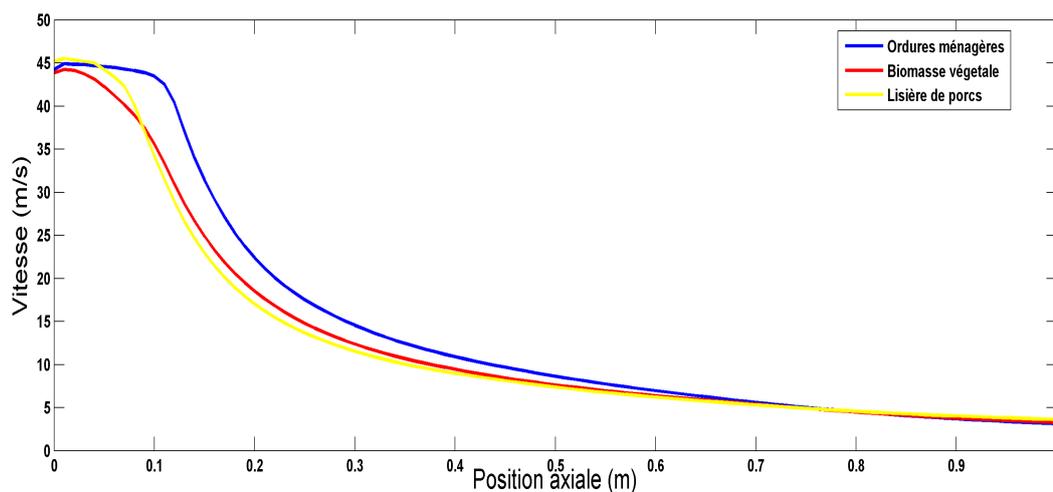


FIGURE 3.39 – Profil axial de la vitesse du biogaz produit à partir des différentes sources : Ordures ménagères (bleu), Biomasse végétale (rouge), lisière de porc (jaune).

Dans l'objectif d'optimiser la chaleur dans les chambres de combustion lors de la com-

bustion du biogaz, nous présentons dans la sous-section suivante une étude sur l'enrichissement du biogaz par le dihydrogène.

3.5 Etudes numériques sur les effets de l'enrichissement du biogaz par le d'hydrogène.

Dans cette partie, les effets de l'enrichissement en dihydrogène du biogaz sur les caractéristiques de la flamme de diffusion turbulente sont faits. Le biogaz considéré pour cette étude provient de fermentation anaérobie des ordures ménagères ; sa composition est de 30 % en CH_4 , 22 % en CO_2 , 9,6 % en O_2 et 30 % en N_2 [2]. Un enrichissement de ce biogaz avec le dihydrogène est de 4 à 24 % en volume, la simulation numérique est faite dans la configuration de la flamme de diffusion turbulente de type "DLR Flame A" du laboratoire Sandia. Cette étude est faite à l'aide du mécanisme de cinétique chimique réduit par notre approche CSP. $k-\varepsilon$ et PaSR sont respectivement utilisés comme modèle de turbulence et de combustion turbulente. Les taux de dégagement de chaleur, taux de réactions chimiques, et les fractions massiques moyennes des espèces chimiques majoritaires sont étudiés.

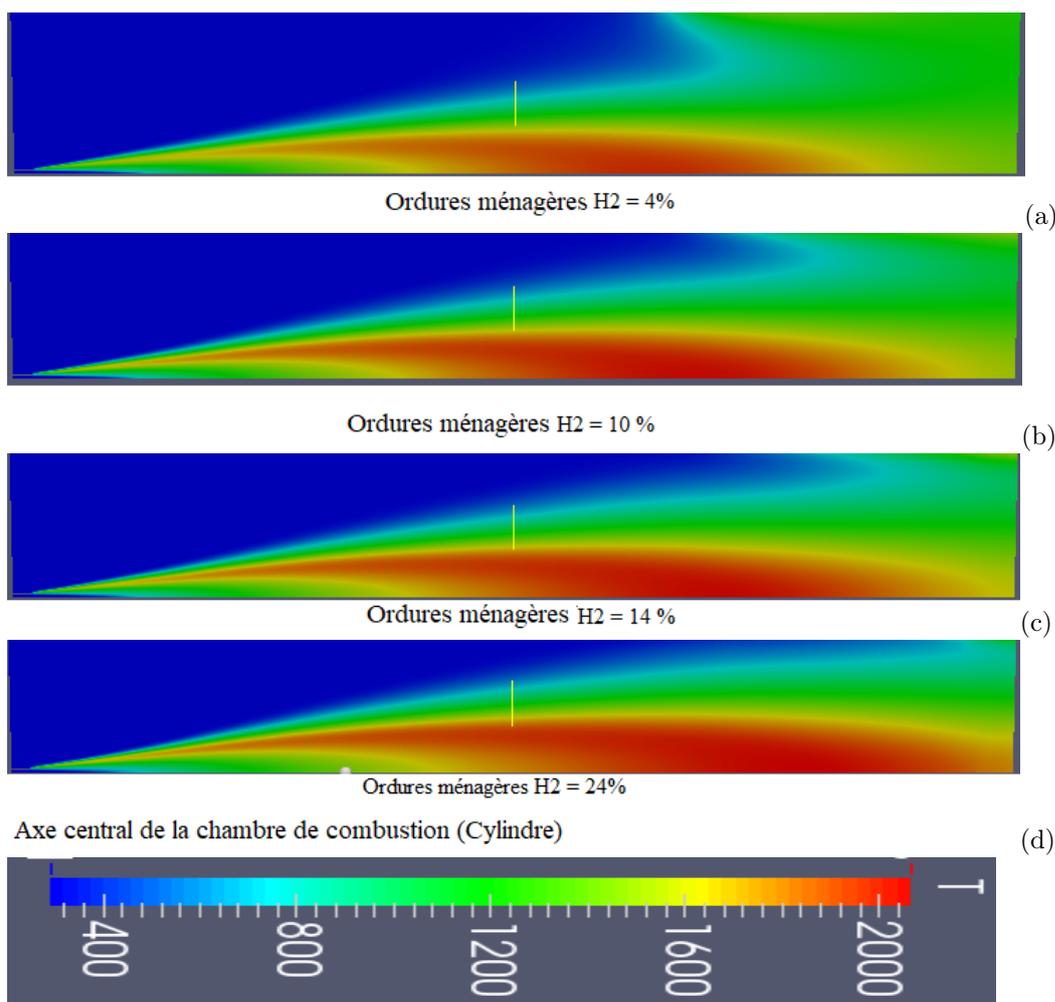


FIGURE 3.40 – Contour de la température du biogaz sous l'enrichissement par le dihydrogène

Les figures 3.40 et 3.41 donnent respectivement les contours et les profils radiaux en trois positions $X/D = 5, 10$ et 20 de la températures de la combustion du biogaz sous l'enrichissement par le dihydrogène (4 à 24% en H_2). Les observations faites sur toutes les positions des pics de températures, la largeur et la longueur de la flamme sont fonction de la teneur en dihydrogène ajoutée. Les résultats montrent que le taux de dégagement de chaleur est proportionnel au dihydrogène ajouté dans le biogaz, comme le montre les figures 3.41 et 3.50 (a) sur les trois positions radiales $X/D = 5, 10$ et 20 et les profils axiaux de la température, respectivement.

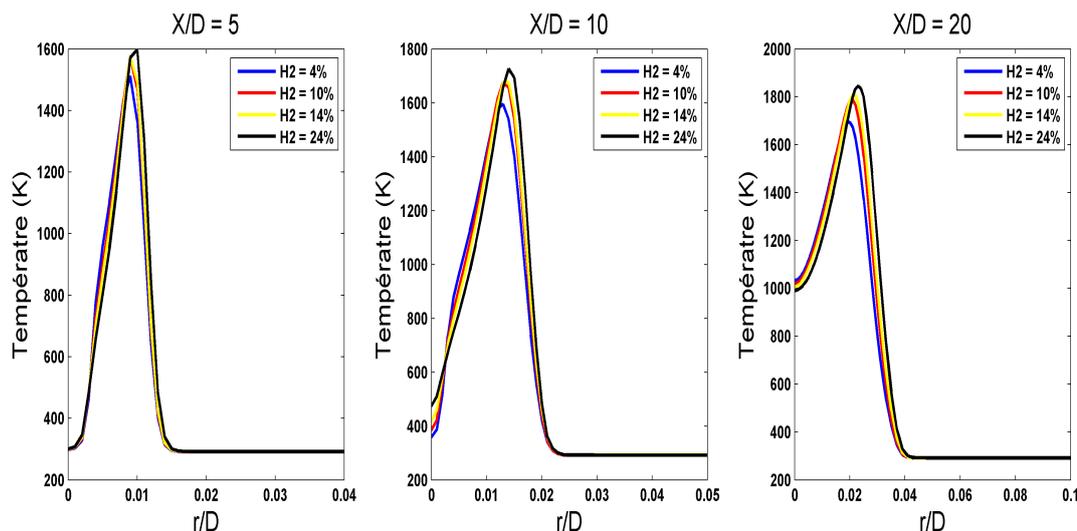


FIGURE 3.41 – Profil radial de la température sur l'effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères ($Y_{H2} = 4\%$ en bleu , $Y_{H2} = 10\%$ en rouge, $Y_{H2} = 14\%$ en jaune et $Y_{H2} = 24\%$ en noire)

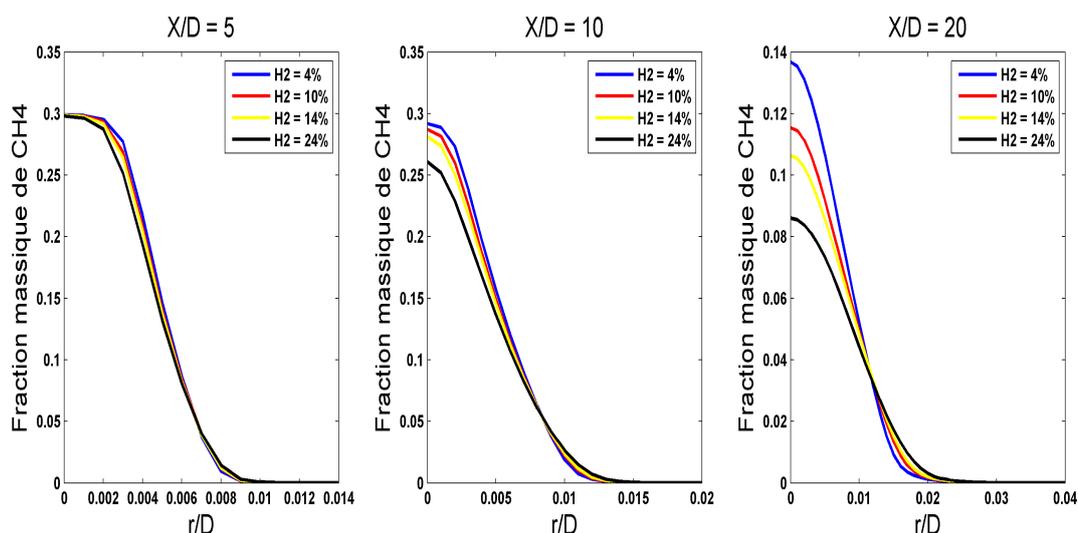


FIGURE 3.42 – Profil radial de la fraction massique de CH4 sur l'effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères ($Y_{H2} = 4\%$ en bleu , $Y_{H2} = 10\%$ en rouge, $Y_{H2} = 14\%$ en jaune et $Y_{H2} = 24\%$ en noire)

La figure 3.42 donne le profil radial en trois positions $X/D = 5, 10$ et 20 de la fraction massique moyenne de la composante principale du biogaz qui est le méthane (CH_4). On observe qu'avant la position $X/D = 10$ les trois courbes sont presque confondues, ce qui signifie que le combustible CH_4 est consommé de la même façon dans cet intervalle d'espace. Pour X/D supérieure à 10 , on constat que l'espèce CH_4 du biogaz enrichi est de plus en plus consommée par ordre croissant de la teneur en dihydrogène initialement présent dans le biogaz. On peut conclure que plus la teneur en H_2 est élevée, le CH_4

est de plus en plus consommé et par conséquent produit de plus en plus de la chaleur.

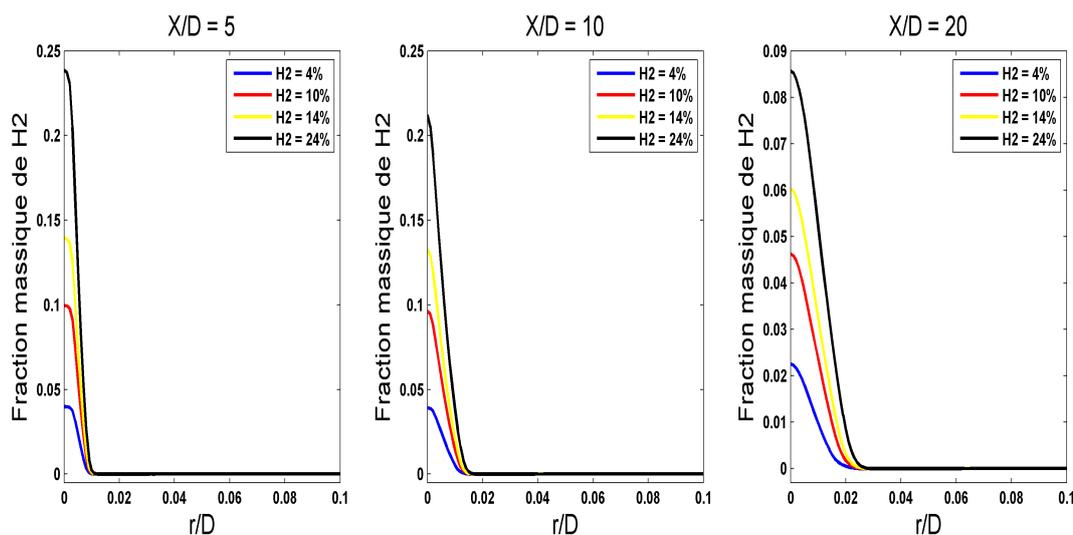


FIGURE 3.43 – Profil radial de la fraction massique de H2 sur l'effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères ($Y_{H2} = 4\%$ en bleu , $Y_{H2} = 10\%$ en rouge, $Y_{H2} = 14\%$ en jaune et $Y_{H2} = 24\%$ en noire)

Les figure 3.43 à 3.49 donnent respectivement les profils radiaux des fractions massiques moyennes des espèces H2, O2, H2O, CO2, CO, OH, et CH3; les résultats escomptés sont obtenus.

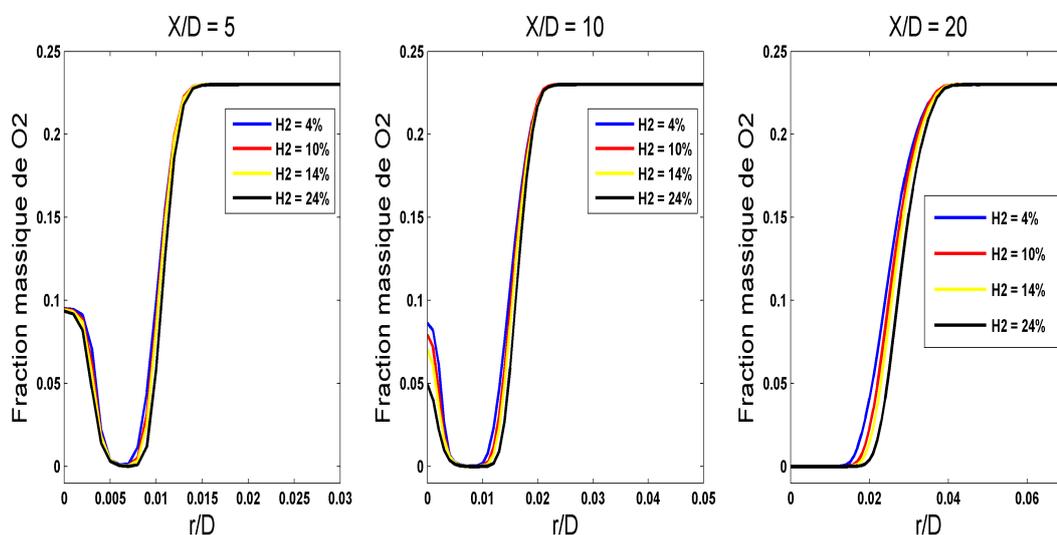


FIGURE 3.44 – Profil radial de la fraction massique de O2 sur l'effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères ($Y_{H2} = 4\%$ en bleu , $Y_{H2} = 10\%$ en rouge, $Y_{H2} = 14\%$ en jaune et $Y_{H2} = 24\%$ en noire)

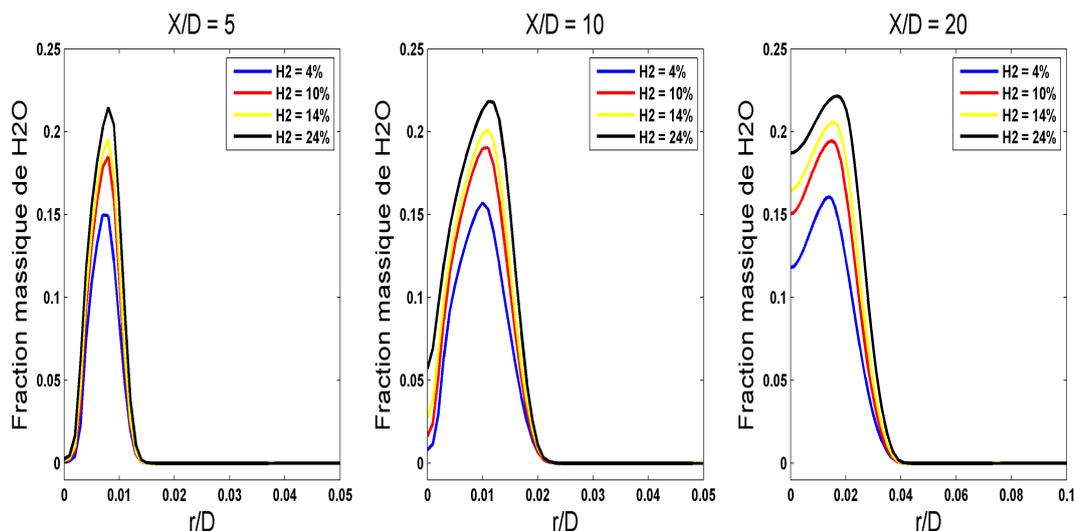


FIGURE 3.45 – Profil radial de la fraction massique de H2O sur l’effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH2 = 4% en bleu , YH2 = 10% en rouge, YH2 = 14% en jaune et YH2 = 24% en noire)

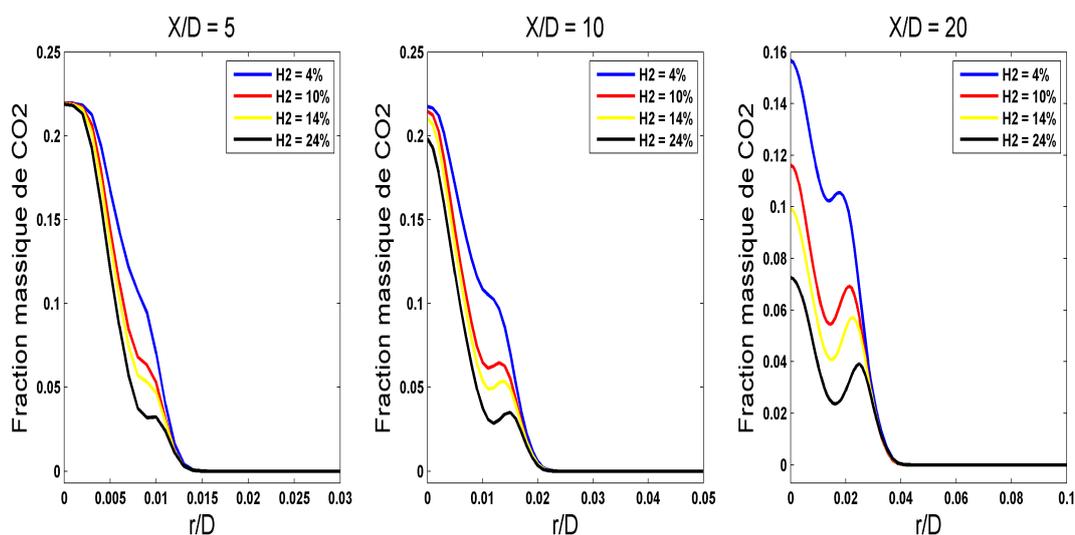


FIGURE 3.46 – Profil radial de la fraction massique de CO2 sur l’effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH2 = 4% en bleu , YH2 = 10% en rouge, YH2 = 14% en jaune et YH2 = 24% en noire)

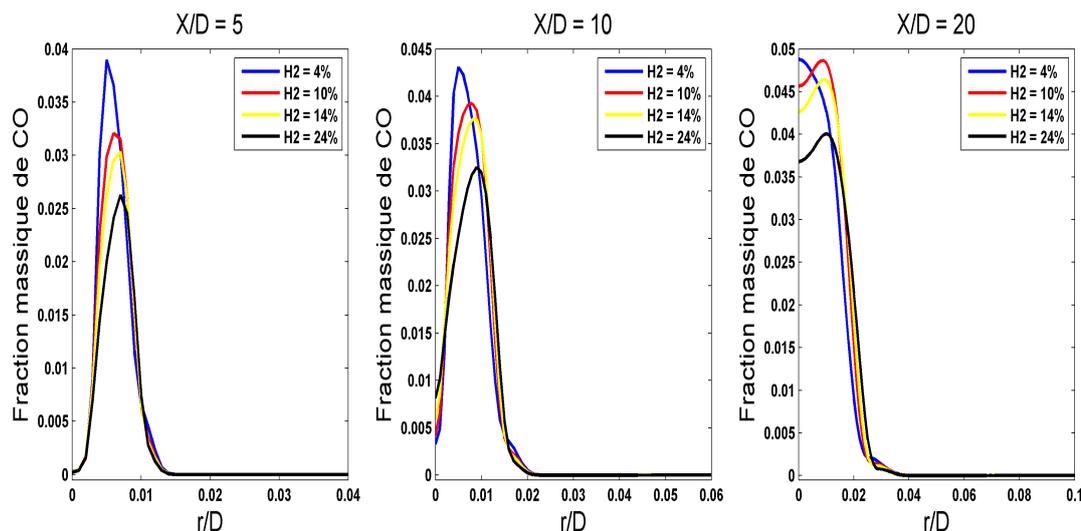


FIGURE 3.47 – Profil radial de la fraction massique de CO sur l'effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH2 = 4% en bleu , YH2 = 10% en rouge, YH2 = 14% en jaune et YH2 = 24% en noire)

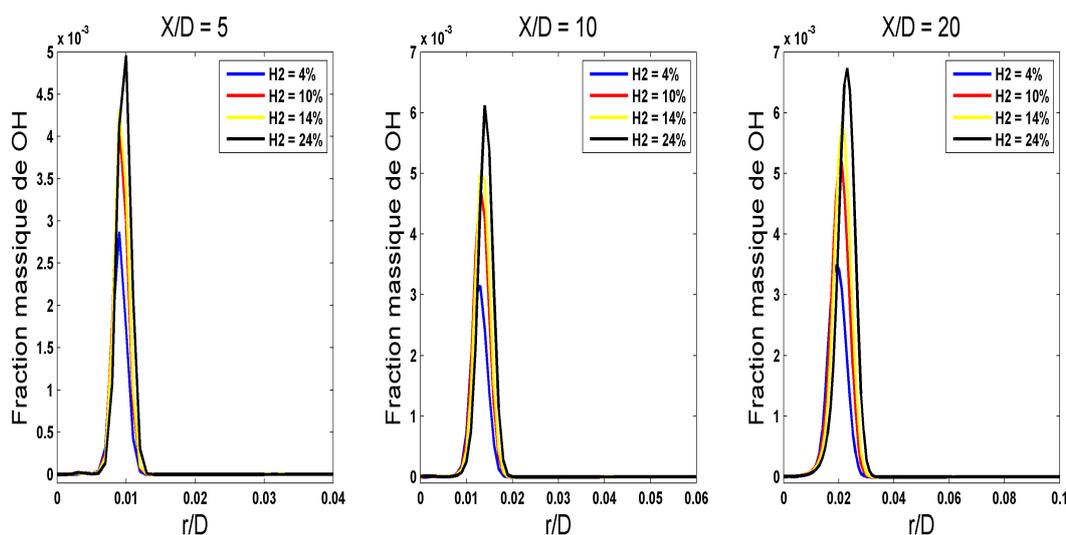


FIGURE 3.48 – Profil radial de la fraction massique de OH sur l'effet de H2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH2 = 4% en bleu , YH2 = 10% en rouge, YH2 = 14% en jaune et YH2 = 24% en noire)

La formation des radicaux libres, tels que H, O et OH, sont améliorées avec l'augmentation du rapport d'addition dihydrogène. Des taux de réactions les plus élevés des réactions élémentaires exothermiques, en particulier celle avec le radical libre OH est augmenté (Figure 3.48 et 3.52 (b)), sont bénéfiques pour l'amélioration des caractéristiques de la combustion et du dégagement de la chaleur du biogaz dans des applications pratiques.

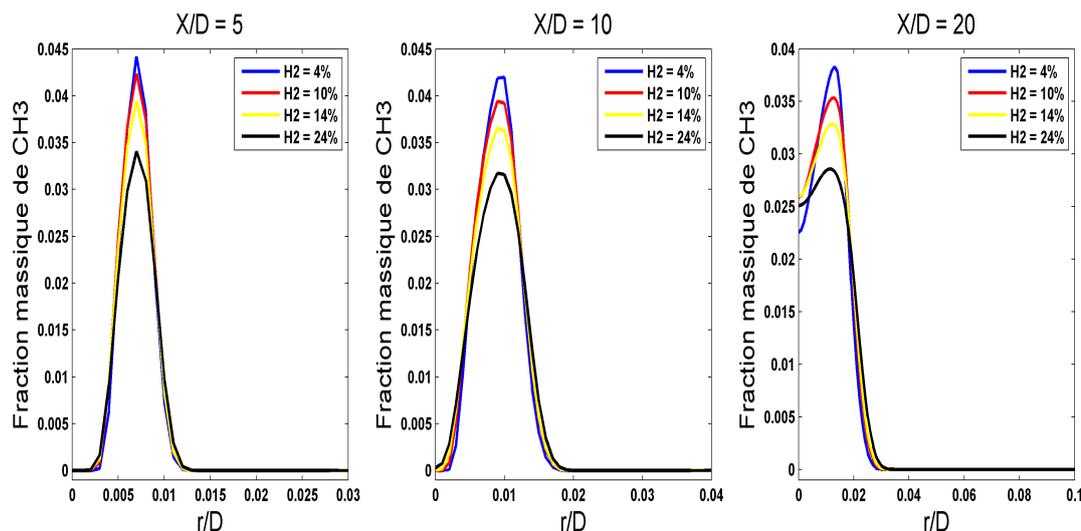


FIGURE 3.49 – Profil radial de la fraction massique de CH₃ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire)

Les figures 3.50 à 3.52 montrent les profils axiaux de la température moyenne et des fractions massiques moyennes des espèces majoritaires et les radicaux du biogaz enrichi par le d'hydrogène. La figure 3.50 (a) montre l'évolution de la température, l'observation faite ici confirme que l'enrichissement du biogaz par le dihydrogène stabilise la flamme de diffusion turbulente et surtout augmente la température dans la chambre de combustion suivant le taux d'addition en dihydrogène.

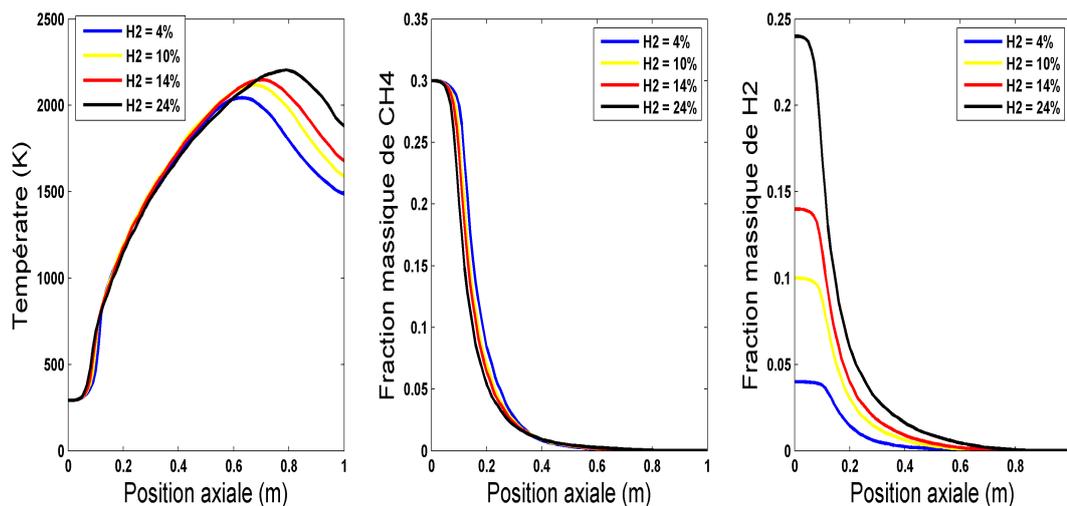


FIGURE 3.50 – Profil axial de la température et des fractions massiques de CH₄ et H₂ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire)

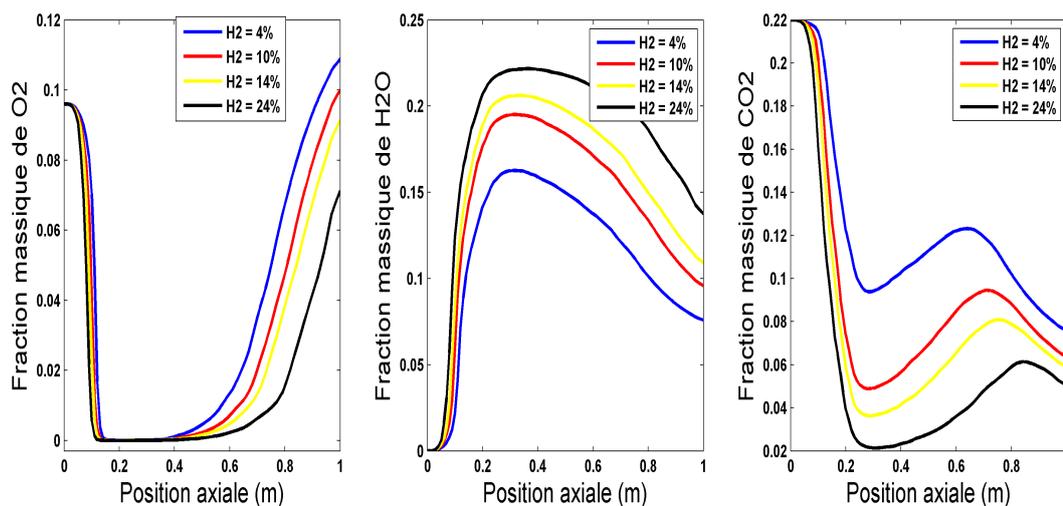


FIGURE 3.51 – Profil axial des fractions massiques de O₂, H₂O et CO₂ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire)

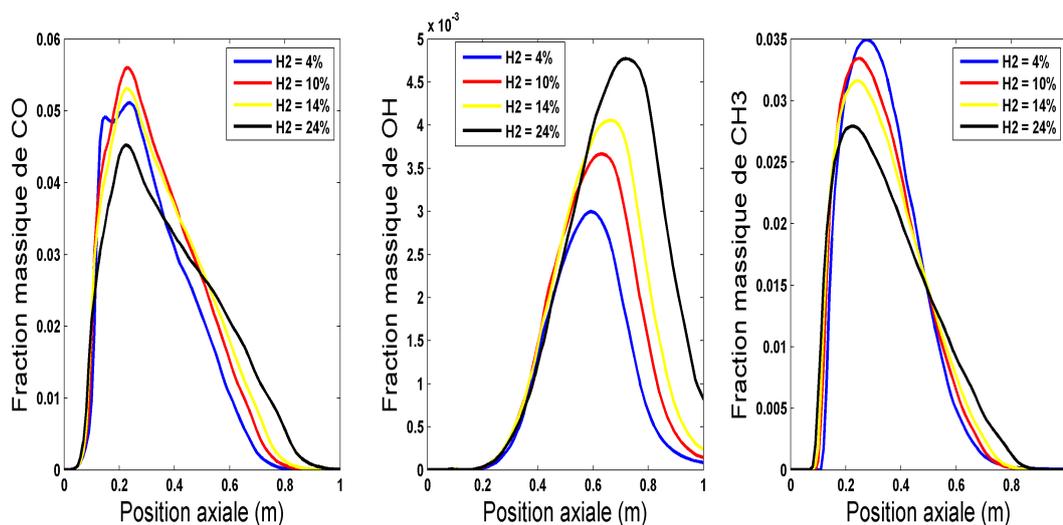


FIGURE 3.52 – Profil axial des fractions massiques de CO, OH et CH₃ sur l'effet de H₂ dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères (YH₂ = 4% en bleu , YH₂ = 10% en rouge, YH₂ = 14% en jaune et YH₂ = 24% en noire).

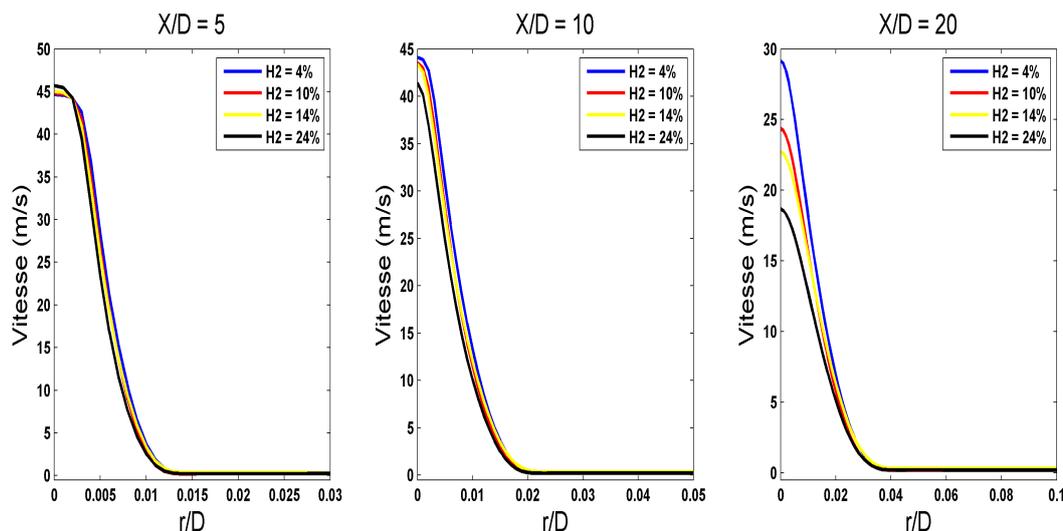


FIGURE 3.53 – Profil radial de la vitesse sur l'effet de H_2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères ($Y_{H_2} = 4\%$ en bleu , $Y_{H_2} = 10\%$ en rouge, $Y_{H_2} = 14\%$ en jaune et $Y_{H_2} = 24\%$ en noire).

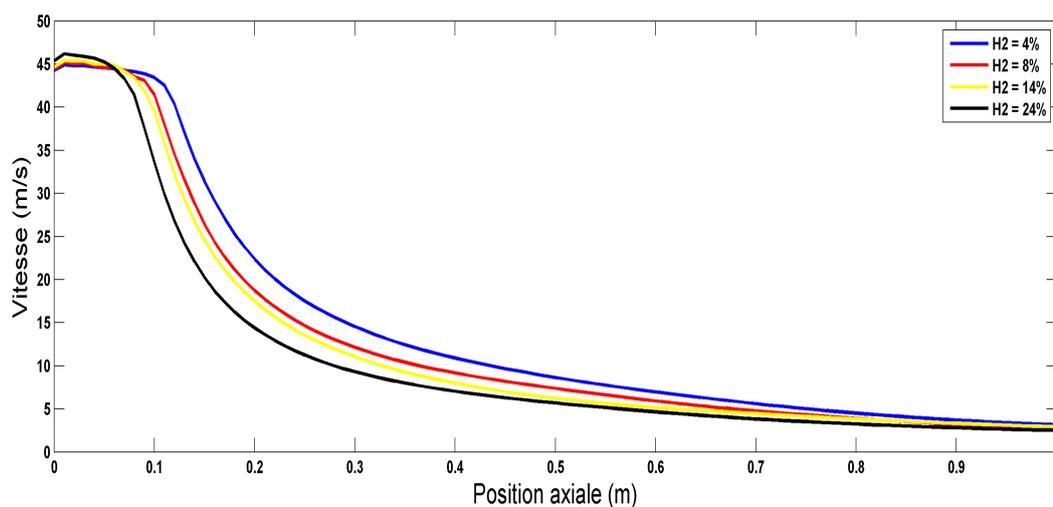


FIGURE 3.54 – Profil axial de la vitesse sur l'effet de H_2 dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères ($Y_{H_2} = 4\%$ en bleu , $Y_{H_2} = 10\%$ en rouge, $Y_{H_2} = 14\%$ en jaune et $Y_{H_2} = 24\%$ en noire).

Sur la base des résultats et discussions susmentionnés, on peut conclure que le dopage du biogaz avec le dihydrogène est une technique appropriée pour optimiser le dégagement de la chaleur dans les chambres de combustion. En plus ces résultats montrent que le mécanisme réduit par notre approche CSP peut permettre de mener une étude numérique en combustion du biogaz.

3.6 Conclusion partielle

Dans ce chapitre, il était question de présenter et discuter les résultats de nos travaux. Dans un premier temps, nous avons présenté des résultats du code CSP qui sont basés sur l'analyse des indices d'importances des modes sur l'évolution des espèces et le degré de participation des réactions, une intégration des mécanismes réduit et détaillé est faite dans le package Chemkin II, avec pour solver DVODE. On a observé un bon accord entre les mécanismes, ceci montrant que les mécanismes réduits peuvent bien reproduire les mêmes résultats que le mécanisme détaillé.

Par la suite, nous avons présenté des résultats de simulations numériques d'une flamme de diffusion turbulente avec pour modèles de combustion PaSR et MIL, $k-\epsilon$ comme modèle de turbulence. Le choix du modèle de combustion MIL était motivé par la volonté de valider la table de délais d'ignition du mécanisme réduit par notre approche CSP. Une comparaison des résultats est faite avec les données expérimentales de la flamme de type "DLR-Flame A" du laboratoire Sandia, nous avons observé un bon accord entre les résultats numériques des deux modèles de combustion et les données expérimentales. Mais un constat remarquable est fait entre les résultats des deux modèles de combustion turbulente, le résultat utilisant le modèle de combustion PaSR est plus proche des données expérimentales comparé aux résultats utilisant le modèle MIL. L'explication sortie de là est que le modèle PaSR prend directement en compte le mécanisme détaillé dans le code CFD, alors que le modèle MIL utilise la table de délais d'ignition calculée à partir du mécanisme détaillé et seule une réaction globale est utilisée dans le code CFD. D'une façon générale, les résultats des deux modèles de combustion sont satisfaisants, comparés aux données expérimentales. Néanmoins, le modèle PaSR est plus proche des données expérimentales, malgré que son temps de convergence est largement supérieur à celui utilisant le modèle MIL.

Nous avons également fait des simulations numériques de la combustion du biogaz en utilisant le mécanisme de cinétique chimique réduit par la méthode CSP. Nous avons choisi dans la littérature la composition chimique des biogaz produits à partir des différentes sources (Ordures ménagères, Lisier de porcs et la biomasse végétale). Ce

choix était fait dans le but de montrer l'influence de la teneur en méthane (CH_4) au cours de la combustion du biogaz. Le constat qui est sorti de là était simple et logique dans sens que plus la teneur en méthane (CH_4) est élevée dans le biogaz, la combustion de ce dernier dégage plus de la chaleur.

Et enfin, vu l'importance d'utiliser le biogaz comme source d'énergie dans le monde industriel (combustion turbulente d'une flamme de diffusion), nous avons étudié l'enrichissement de ce dernier par l'ajout du dihydrogène, ceci pour augmenter le PCI du biogaz afin d'obtenir plus de chaleur au cours de sa combustion. L'ajout a été fait dans l'intervalle de 4 à 24 % en teneur de dihydrogène (H_2) dans le biogaz produit à partir des ordures ménagères, l'observation faite montre que, le dégagement de chaleur est proportionnel au pourcentage du dihydrogène ajouté.

Au regard des résultats présentés dans ce chapitre, on peut affirmer que le mécanisme de cinétique chimique réduit par notre approche de la méthode CSP présenté dans le chapitre 2, peut permettre de mener une étude dans le package Chemkin II, faire des simulations numériques impliquant une flamme de diffusion turbulente, la table de délais d'ignition et surtout la simulation numérique du biogaz et le biogaz enrichi par le dihydrogène.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

CONCLUSION GÉNÉRALE

Ce travail qui portait sur l'écriture et validation d'un code de réduction de mécanisme de cinétique chimique de type "Computational Singular Perturbation" (CSP) : Appliqué à la combustion numérique du biogaz a été organisé en trois chapitres.

Le premier chapitre nous a permis de faire un tour d'horizon sur la situation énergétique au Cameroun et la part du biogaz en particulier, sur l'importance des mécanismes de cinétiques chimiques pour la combustion numérique, sur les difficultés liées à l'utilisation des mécanismes détaillés pour des simulations numériques turbulentes et les différentes techniques de réduction de cinétique chimique afin de réduire le temps de convergence des calculs. La méthode de réduction de type "Computational Singular perturbation" (CSP) a été choisie pour ce travail, puisqu'elle est basée sur les outils mathématiques, donc programmable.

Le chapitre 2 présente les outils mathématiques et numériques. Nous avons dans un premier temps présenté le package Chemkin II, qui est la racine de notre approche CSP et également la méthode CSP en elle même, qui est basée sur l'analyse des indices d'importances des modes ou groupes de réactions sur l'évolution des espèces et le degré de participation des réactions élémentaires. Le protocole de cette méthode est basé sur la démarche du cinéticien qui cherche à préserver au mieux les informations cinétiques. Deux objectifs à atteindre, souvent antagonistes, ont donc guidé notre travail : une diminution maximale du temps de calcul ainsi que le maintien de la prédictivité du modèle. Dans le même chapitre, nous avons présenté le modèle de turbulence k- ϵ standard, il comporte deux équations de transports écrites en k et ϵ , et deux modèles de

combustion turbulente PaSR et MIL. Enfin, le code CFD open source OpenFoam a été présenté. Il nous a permis de simuler la flamme de diffusion turbulente de type "DLR Flame A" donc la configuration a été présentée dans ce chapitre.

Les résultats et discussion de nos travaux ont meublé le troisième chapitre. Cette approche CSP nous a permis de réduire le mécanisme de Yang et Pope à 19 et 22 réactions réversibles. Plusieurs tests ont été effectués pour valider le mécanisme réduit.

Dans un premier temps, nous avons utilisé le package Chemkin II pour la résolution des équations différentielles ordinaires dérivant des mécanismes réduit et détaillé. Un bon accord des profils de température et des fractions massiques des espèces majoritaires des deux mécanismes a été observé, car les délais d'inflammation des mécanismes réduits et détaillé sont identiques.

Dans un second temps, nous avons utilisé les mécanismes détaillé et réduit pour simuler une flamme de diffusion turbulente CH₄/H₂/N₂ dans le code CFD OpenFoam, les résultats ont été comparés aux données expérimentales du laboratoire Sandia de type "DLR flame-A". Dans ce deuxième étape, RANS, k- ϵ et PaSR ont été respectivement utilisés comme schéma de simulation, modèle de turbulence et de combustion turbulente. Nous avons observé un bon accord entre les résultats numériques et les données expérimentales.

Par la suite, le modèle de combustion MIL a été utilisé pour simuler la flamme citée ci-dessus, ceci dans le but de valider la table de délais d'ignition du mécanisme réduit par notre approche CSP. Une comparaison des tables de délais d'ignition calculées à partir des mécanismes GRI. 3.0, Yang et Pope et le mécanisme réduit en fixant la fraction moyenne de mélange et la fraction massique d'oxygène a été faite. Ces tables de délais d'ignition ont été utilisées pour la simulation numérique de la flamme de diffusion turbulente de type "DLR Flame A". Un bon accord a été observé entre les résultats numériques des trois mécanismes et les données expérimentales.

Une étude comparative des deux modèles de combustion MIL et PaSR a été faite, il ressort de ces résultats que le modèle PaSR est plus proche des données expérimentales que le modèle MIL, malgré que le temps de simulation numérique utilisant le modèle

PaSR est largement supérieur à celui utilisant le modèle MIL.

Enfin, le mécanisme réduit a été utilisé pour simuler la combustion numérique du biogaz dans la configuration de la flamme de diffusion turbulente de type "DLR Flame A". Les caractéristiques des biogaz retenus pour cette étude proviennent de la fermentation anaérobie des ordures ménagères, de la biomasse végétale et le lisier de porcs. Il ressort des résultats que le mécanisme réduit par notre approche CSP peut permettre à mener des études sur la combustion numérique du biogaz. Il ressort également de ces résultats que la chaleur dégagée au cours de la combustion du biogaz est proportionnelle à la teneur en méthane (CH_4) contenu dans le biogaz. Dans le souci de valoriser et d'optimiser la chaleur dégagée au cours de la combustion du biogaz, nous avons mené une étude sur l'enrichissement de ce dernier par le dihydrogène, le résultat a été satisfaisant dans le sens que la chaleur dégagée est aussi proportionnelle au dihydrogène ajouté.

PERSPECTIVES

Des éléments de réponses ont été apportés aux différents questionnements scientifiques initialement soulevés. Cependant, au fur et à mesure de l'avancée dans le projet, de nouvelles pistes de réflexion se sont ouvertes sans qu'il soit toujours possible d'y répondre ou de s'y attarder. C'est sans doute l'essence même de la recherche et le propre d'un domaine en plein essor.

Dans la continuité directe du travail réalisé, il serait judicieux d'automatiser notre code et surtout d'écrire un nouveau code CSP capable de générer les réactions globales avec leurs constantes d'Arrhenius.

Utiliser simultanément les deux codes CSP : le premier, qui a fait l'objet de cette thèse soit disposé à éliminer au maximum des réactions rapides et le second approche qui est basée sur STEP-CSP soit disposé à calculer les réactions globales et leur constantes d'Arrhenius.

Appliquer cette méthode à la réduction des mécanismes de cinétiques chimiques complexes tels que : le mécanisme de propane, kérosène, diésel, biodiésel, le mécanisme de l'atmosphère ambiant et de la couche d'ozone pour la prédiction des effets des gaz à

effet de serre.

Faire une simulation numérique sur les différents brûleurs du gaz naturel déjà existant sur le marché afin de sélectionner les meilleurs adaptés au biogaz ; ceci utilisant les mécanismes réduits par la méthode "Computational Singular Perturbation".

Bibliographie

- [1] Brocorens Patrick, Mars 2009, « Evaluation de la disponibilité de ressources énergétiques », Université de Mons.
- [2] M. Herout, J. Malaťák, L. Kučera, T. Dlabaja, 2011, “Biogas composition depending on the type of plant biomass used”, *Res. Agr. Eng*, 57(4), p 137–143.
- [3] Matjaz Osl aj , Bogomir Mursec , Peter Vindis, 2010, “Biogas production from maize hybrids”, *biomass and bioenergy* 34 (2010), P 1538-1545.
- [4] Kurt Möller, Torsten Müller, 2012, “Effects of anaerobic digestion on digestate nutrient availability and crop growth : A review”, *Eng. Life Sci*, 12(3), , P 242–257.
- [5] B. Bharathiraja et al., 2018, “Biogas production – A review on composition, fuel properties, feed stock and principles of anaerobic digestion”, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 90 (2018) 570–582.
- [6] Seyed Ehsan Hosseini, et al., 2015, “study on the characteristics of hydrogen-enriched biogas co-flow flameless combustion”, Conference Paper, Universiti Teknologi Malaysia.
- [7] Dodge, M. C., 2000, “Chemical oxidant mechanisms for air quality modelling : A critical review”, *Atmos. Environ.*, 34, 2103 – 2130.
- [8] Jenkin, M. E., G. D. Hayman, R. G. Derwent, S. M. Saudners, N. Carlslaw, S. Pascoe, and M. J. Pilling, 1999, “Tropospheric chemistry modelling : Improvements to current models and application policy issues”, Final Rep. AEAT-4867/20150/R004 , AEA Technol., Oxfordshire, UK.
- [9] Jacobson, M., 1999, “Fundamentals of Atmospheric Modeling”, Cambridge Univ. Press, New York.

-
- [10] Stockwell, W. R. and Lurmann, F. W., 1989, "Intercomparison of the adom and radm gas-phase chemical mechanisms", Electric Power Research Institute Topical Report, EPRI, Palo Alto, Ca, 257 pp.
- [11] Stockwell, W. R. and Lurmann, F. W., 1989, "Intercomparison of the adom and radm gas-phase chemical mechanisms", Electric Power Research Institute Topical Report, EPRI, Palo Alto, Ca, 257 pp.
- [12] Gery, M. W., Whitten, G. Z., Killus, J. P., and Dodge, M. C., 1989, "A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling", *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 94, 12925–12956.
- [13] Stockwell, W. R., Middleton, P., Chang, J. S., and Tang, X., 1990, "The second-generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling", *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 95, 16343–16367.
- [14] Stockwell, W. R., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S., 1997 "A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling", *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102, 25847–25879.
- [15] Simpson, D., 1995, "Biogenic emissions in europe.2. Implications for ozone control strategies", *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 100, 22891–22906.
- [16] Simpson, D., Fagerli, H., Jonson, J. E., Tsyro, S., Wind, P., and Tuovinen, J.-P., 2003, "Transboundary acidification, eutrophication and ground level ozone in Europe. Emeq status report 1, part I : United emep model description, Norwegian Meteorological Institute", Oslo, 104 pp. http://www.emep.int/publ/reports/2003/emep_report_1_part1_2003.pdf.
- [17] Jenkin, M. E., Saunders, S. M., and Pilling, M. J., 1997, "The tropospheric degradation of volatile organic compounds : A protocol for mechanism development", *Atmos. Environ.*, 31, 81–104.
- [18] Jenkin, M. E., Saunders, S. M., Wagner, V., and Pilling, M. J., 2003, "Protocol for the development of the master chemical mechanism, mcm v3 (part b) : Tropospheric degradation of aromatic volatile organic compounds", *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 181–193, <http://www.atmos-chem-phys.net/3/181/2003/>.

-
- [19] Aumont, B., Szopa, S., and Madronich, S., 2005, "Modelling the evolution of organic carbon during its gas-phase tropospheric oxidation : Development of an explicit model based on a self-generating approach", *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2497–2517, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/2497/2005/>.
- [20] Smith, G. P. - Golden, D. M. - Frenklach, M. - Moriarty, N. W. - Eite-
neer, B. - Goldenberg, M. - Bowman, C. T. - Hanson, R. K. - Song, S.
- Gardinaer, W. C. - Lissianski, V. V., 1998, GRI-Mech version 3.0, [http://
www.me.berkeley.edu/gri_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/).
- [21] Curran, H. J. - Gaffuri, P. - Pitz, W. J. - Westbrook, C. K., A, 1998, "Compre-
hensive Modeling Study of n-Heptane Oxidation", *Combustion and Flame*, 114,
pp. 149-177
- [22] Côme, G. M. - Warth, V. - Glaude, P. A. - Fournet, R. - Battin-Leclerc, F. -
Scacchi, G., 1996, "Computer-Aided Design of Gas-Phase Oxidation Mechanisms
– Application to the Modeling of n-Heptane and Iso-octane Oxidation", *Twenty-
Sixth Symposium (International) on Combustion / The Combustion Institute*, pp.
755-762.
- [23] Côme, G. M. - Warth, V. - Glaude, P. A. - Fournet, R. - Battin-Leclerc, F. -
Scacchi, G., 1996, "Computer-Aided Design of Gas-Phase Oxidation Mechanisms
– Application to the Modeling of n-Heptane and Iso-octane Oxidation", *Twenty-
Sixth Symposium (International) on Combustion / The Combustion Institute*, pp.
755-762.
- [24] Glaude, P. A. - Warth, V. - Fournet, R. - Battin-Leclerc, F. - Scacchi, G. - Côme,
G. M., 1998, "Modeling of the Oxidation of n-Octane and n-Decane Using an
Automatic Generation of Mechanisms", *Int. J. Chem. Kinet.*, 30, pp. 949-959.
- [25] Balès-Guéret, C. - Cathonnet, M. - Boettner, J.-C. - Gaillard, F., 1990, "Experi-
mental Study and Modeling of Kerosene Oxidation in a Jet-Stirred Flow Reactor",
*Twenty-Third Symposium (International) on Combustion / The Combustion Ins-
titute*, pp. 211-216.
- [26] Lindstedt, R. P. – Maurice, L. Q., A, 2000, "Detailed Chemical Kinetic Model for
Aviation Fuels", *J. Propuls. Power*, 16, p. 187-195
-

-
- [27] Patterson, P. M. – Kyne, A. G. – Pourkashanian, M. – Williams, A. – Wilson, C. W., 2000, “Combustion of Kerosene in Counterflow Diffusion Flames”, *J. Propuls. Power*, 16, pp. 453-460.
- [28] Ristori, A., 2000, “Modélisation de la Combustion du Gazole - Etude des Aspects Chimiques”, Thèse de l'Université d'Orléans.
- [29] Jocelyn Luche., 2003, “Obtention de modèles cinétiques réduits de combustion - Application à un mécanisme du kérosène”, Chimie. Université d'Orléans, Français. <tel-00636023>
- [30] Lowe, R. M - Tomlin, A. S., Oct 1998, “The Application of Repro-Modelling to a Tropospheric Chemical Model”, Conférence Internationale sur la Modélisation et la Simulation de la Pollution Atmosphérique, pp. 423-433.
- [31] Frouzakis, C. E. - Boulouchos, K., 2000, “Analysis and Reduction of the CH₄-Air Mechanism at Leans Conditions”, *Combust. Sci. Tech.*, 159, pp. 281-303.
- [32] Turnyi, T., 1997, “Applications of Sensitivity Analysis to Combustion Chemistry”, *Reliability Engineering and System Safety*, 57, pp. 41-48.
- [33] Griths, J. F., 1995, “Reduced Kinetic Models and their Application to Practical Combustion Systems”, *Prog. Energy Combust. Sci.*, 21, pp. 25-107.
- [34] Turnyi, T., 1994, “Parameterization of Reaction Mechanisms Using Orthonormal Polynomials”, *Computers Chem.*, 18, pp. 45-54.
- [35] Maas, U. - Pope, S. B., 1992, “Simplifying Chemical Kinetics : Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Composition Space”, *Combustion and Flame*, 88, pp. 239-264.
- [36] Maas, U., 1998, “Efficient Calculation of Intrinsic Low-Dimensional Manifolds for the Simplification of Chemical Kinetics”, *Computing and Visualization in Science*, 1, (No 2), pp. 69-81.
- [37] Lu, T. F., and Law, C. K., 2005, “A Directed Relation Graph Method for Mechanism Reduction,” *Proc. Combust. Inst.*, 30(1), pp. 1333–1341.
- [38] Lu, T. F., and Law, C. K., 2006, “On the Applicability of Directed Relation Graphs to the Reduction of Reaction Mechanisms,” *Combust. Flame*, 146(3), pp. 472–483.
-

-
- [39] Lu, T. F., and Law, C. K., 2006, "Linear Time Reduction of Large Kinetic Mechanisms With Directed Relation Graph : N-Heptane and Iso-Octane," *Combust. Flame*, 144(1-2), pp. 24-36.
- [40] Turányi, T. - Tomlin, A. S. - and Pilling, M. J., 1993, "On the Error of the Quasi-Steady-State Approximation", *J. Phys. Chem.*, 97, pp. 163-172.
- [41] Beretta, G. P., Janbozorgi, M., and Metghalchi, H., 2016, "Degree of Disequilibrium Analysis for Automatic Selection of Kinetic Constraints in the Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Method," *Combust. Flame*, 168, pp. 342-364.
- [42] Yu, G., Hadi, F., and Metghalchi, H., 2018, "Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Application in Shock Tube Ignition Delay Time Simulation," *ASME J. Energy Resour. Technol.* , 141(2), p. 020801.
- [43] Yu, G., Metghalchi, H., Askari, O., and Wang, Z., 2018, "Combustion Simulation of Propane/Oxygen (With Nitrogen/Argon) Mixtures Using Rate-Controlled Constrained Equilibrium," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, 141 (2), p. 022204.
- [44] Massias, A. - Diamantis, D. - Mastorakos, E. - Goussis, D. A., 1999, "An Algorithm for the Construction of Global Reduced Mechanisms with CSP Data, *Combustion and Flame*", 117, pp. 685-708 A. Berntson,
- [45] Massias, A. - Diamantis, D. - Mastorakos, E. - Goussis, D. A., 1999, "Global Reduced Mechanisms for Methane and Hydrogen Combustion with Nitric Oxide Formation Constructed with CSP", *Combust. Theory Modelling*, 3, pp. 233-257.
- [46] Lam, S. H., 1993, "Using CSP to Understand Complex Chemical Kinetics", *Combust. Sci. and Tech.*, 89, pp. 375-404.
- [47] Lam, S. H. - Goussis, D. A., 1994, "The CSP Method for Simplifying Kinetics", *Int. J. Chem. Kinet.*, 26, pp. 461-486.
- [48] Yang, B., and Pope, S. B., 1998, "An Investigation of the Accuracy of Manifold Methods and Splitting Schemes in the Computational Implementation of Combustion Chemistry," *Combust. Flame*, 112(1-2), pp. 16-32.
- [49] Awakem, D., Obounou, M., & Noume, H. C., 2018 "Application of the Computational Singular Perturbation Method to a Turbulent Diffusion CH₄/H₂/N₂ Flame
-

-
- Using OpenFOAM” ASME J. Energy Resour. Technol., 141(4), 042201.
- [50] AIE(2015), « CO2 emissions by product and flow », IEA CO2 Emissions from Fuel Combustion statistics (base de données), <http://dx.doi.org/10.1787/data-0043-en>.
- [51] Nicolas Dupont, 2010, “Valorisation du biogaz de fermentation : combustion catalytique”, thèse, Autre. Université Claude Bernard - Lyon I, Français. ffNNT : 2010LYO10081ff. fftel-00816867ff.
- [52] Léa Sigot, 2004, “Épuration fine des biogaz en vue d’une valorisation énergétique en pile à combustible de type SOFC–Adsorption de l’octaméthylcyclotétrasiloxane et du sulfure d’hydrogène”, thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- [53] Ministère de l’eau et d’énergie (Cameroun), 2015, Rapport sur la situation énergétique du Cameroun.
- [54] J.POULLEAU., 2002, “Caractérisation des BIOGAZ Bibliographie Mesures sur sites”, Rapport INERIS.
- [55] Somehsaraei, H. ; Majoumerd, M. ; Breuhaus, P. ; Assadi, M., 2014, “Performance analysis of a biogas-fueled microgas turbine using a validated thermodynamic model”, Appl. Therm. Eng, 66, 181–190.
- [56] Zhen, H. ; Leung, C. ; Cheung, C., 2013, “Effects of hydrogen addition on the characteristics of a biogas diffusion flame”, Int. J. Hydrogen Energy, 38, 6874–6881.
- [57] Wei, Z., Leung, C., Cheung, C., Huang, Z., 2016, “Effects of equivalence ratio, H₂, and CO₂ addition on the heat release characteristics of premixed laminar biogas-hydrogen flame”, Int. J. Hydrogen Energy, 41, 6567–6580.
- [58] Mameri, A. ; Tabet, F., 2016, “Numerical investigation of counter-flow diffusion flame of biogas-hydrogen blends : Effects of biogas composition, hydrogen enrichment and scalar dissipation rate on flame structure and emissions”, Int. J. Hydrogen Energy, 41, 2011–2022.
- [59] T.Lu and C.K.Law., 2009, “Toward accommodating realistic fuel chemistry in large scale simulations”, Progress in Energy and Combustion Science, 35 :192- 215.

-
- [60] Jurgen Warnatz., 1992, “Resolution of gas phase and surface combustion chemistry into Elementary Reactions”, Twenty-Fourth Symposium (International) on Combustion /The Combustion Institute, 1992, pp. 553-579.
- [61] Lepage, V., 2000, “Elaboration d’une Méthode de Réduction de Schémas Cinétiques Détaillés application aux Mécanismes de Combustion du Gaz Naturel et du N-décane”, Thèse de l’Université Pierre et Marie Curie (Paris VI).
- [62] Revel, J., 1991, “Modélisation de la Combustion de Mélanges Méthane–Air : Validation d’un Mécanisme Détaillé, Construction d’un Modèle Cinétique Global Equivalent”, Thèse de l’Université de Pierre et Marie Curie (Paris VI).
- [63] Revel, J. - Boettner, J.-C. - Cathonnet, M. - Bachman, J. S., 1994, “Derivation of a Global Chemical Kinetic Mechanism for Methane Ignition and Combustion”, *J. Chim. Phys.*, 91, pp. 365-382.
- [64] Griffiths, J. F., 1995, “Reduced Kinetic Models and their Application to Practical Combustion Systems”, *Prog. Energy Combust. Sci.*, 21, pp. 25-107.
- [65] Turányi, T., 1994, “Application of Repro-Modeling for the Reduction of Combustion Mechanisms”, Twenty-Fifth Symposium (International) on Combustion / The Combustion Institute, pp. 949-955.
- [66] Turányi, T., 1994, “Parameterization of Reaction Mechanisms Using Orthonormal Polynomials”, *Computers Chem.*, 18, pp. 45-54.
- [67] Keck, J. C., and Gillespie, D., 1971, “Rate-Controlled Partial-Equilibrium Method for Treating Reacting Gas Mixtures,” *Combust. Flame*, 17 (2), pp. 237–241.
- [68] Yu, G., Hadi, F., and Metghalchi, H., 2018, “ Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Application in Shock Tube Ignition Delay Time Simulation, ” *ASME J. Energy Resour. Technol.*, 141 (2), p. 020801.
- [69] Du, L., Yu, G., Wang, Z., and Metghalchi, H., 2019, “ The Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Combustion Modeling of N -Pentane/Oxygen/Diluent Mixtures,” *ASME J. Energy Resour. Technol.*, 141(8), p. 082206.
- [70] Yu, G., Metghalchi, H., Askari, O., and Wang, Z., 2018, “ Combustion Simulation of Propane/Oxygen (With Nitrogen/Argon) Mixtures Using Rate -Controlled
-

- Constrained-Eq uilibrium,” ASME J. Energy Resour. Technol., 141 (2), p. 022204.
- [71] Janbozorgi, M., Ugarte, S., Metghalchi, H., and Keck, J.C., 2009, “Combustion modelling of mono-carbon fuels using the rate-controlled constrained-equilibrium method”, *Combust. Flame*, 156(10), pp. 187–1885.
- [72] Janbozorgi, M., Ugarte, S., Metghalchi, H., and Keck, J.C., 2009, “Combustion modelling of mono-carbon fuels using the rate-controlled constrained-equilibrium method”. *Combust. Flame*, 156(10), pp. 187–1885.
- [73] Gordon, S., and McBride, B. J., 1994, “Computer program for calculation of complex chemical equilibrium compositions and applications”, NASA Reference Publication 1311, National Aeronautics and Space Administration.
- [74] Reynolds, W. C., 1986, “The element potential method for chemical equilibrium analysis : Impelementation in the interactive program STANJAN”, Stanford University Report ME 270 HO7, Stanford University.
- [75] Hindmarsh, A. C., 2002, “Serial fortran solvers for ode initial value problems”, <http://www.llnl.gov/CASC/odepack/>.
- [76] Bodenstein, M. - Lutkemeyer, H., 1924, “Quasi-Steady State Assumption”, *Z. Phys. Chem.*, 114.
- [78] Ferrendier, M., 1998, “Mise au Point de Schémas Cinétiques Réduits pour Décrire la Formation des Polluants NOx dans la Combustion”, Thèse, Université d’Orléans.
- [79] Wang, W. - Rogg, B. - Williams, F. A., 1993, “Reduced Kinetic Mechanisms for Wet CO Flames, in “Reducing Kinetic Mechanisms for Applications in Combustion Systems”, de N. Peters et B. Rogg, *Lecture Notes in Physics M.15*, Springer Verlag.
- [80] Tomlin, A. S. - Pilling, M. J. - Merkin, J. H. - Brindley, J. - Burgess, N. - Gough, A., 1995, “Reduced Mechanisms for Propane Pyrolysis”, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34, pp. 3749-3760.
- [81] Keck, J. C., 1990, “Rate-controlled constrained-equilibrium theory of chemical reactions in complex systems”, *Prog. Energy Combust. Sci.*, 16(2), pp. 125–154.

-
- [82] Pilling, M. - Turányi, T. - Hughes, K. - Clague, K., 1995, KINALC, <http://chem.leeds.ac.uk/Combustion/Combustion.html>, version 1.0.
- [83] Goussis, D. A. - Lam, S. H., 1991, CSP91, <http://www.princeton.edu/ftp.awtron/>.
- [84] Kee, R.J. - Rupley, F.M. - Miller, J.A., 1989, "CHEMKIN II : A FORTRAN Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics", Sandia National Laboratories Report, SAND89-8009B, UC-706.
- [85] Glarborg, P.- Kee, R.J.- Grcar, J. F.- Miller, J.A., 1986, "PSR : A Fortran Program Modeling Well-Stirred Reactors", Sandia National Laboratories Report, SAND86-8209, UC-4.
- [86] Gnentedem, C., Awakem, D., Obounou M., Ekobena F, H, P., Njomo, D., 2019, "Application of a reduced mechanism by Computational Singular Perturbation method to the calculation of the ignition delays of a turbulence diusion flame CH₄ /H₂ /N₂", ASME J. En-ergy Resour. Technol,142(5), 062302.
- [87] Kee, R.J.- Rupley, F.M. - Miller, J.A.,1987, "The CHEMKIN II Thermodynamical Data Bases", Sandia National Laboratories Report, SAND85-8240, (Réédition janvier 1993).
- [88] JANAF, 1971, "Thermochemical Tables", National Standard Ref. Data Service, NSRDS-NBS 37.
- [89] Gordon, S. - McBride, B. J., 1971, "Computer Program for Calculation of Complex Chemical Equilibrium Compositions", Rocket Performance, Incident and Reflected Shocks, and Chapman-Jouguet Detonations, NAS SP-273.
- [90] Zuozhu Wu, Xinqi Qiao, Zhen Huang, 2014, "Development and validation of a reduced mechanism for methane using a new integral algorithm in a premixed flame", Hem. Ind. 68 (5) 529–539.
- [91] Chen, J.-Y., 1988, "Short Communication : A General Procedure for Constructing Reduced Mechanisms with given Independent Relations", Combust. Sci. Tech., 57, pp. 89-94.
- [92] D. Goussis, 1996, "On the Construction and Use of Reduced Chemical Kinetic Mechanisms Produced on the Basis of Given Algebraic Relation", s, J. Comput.
-

-
- Physics 128, pp. 261–273.
- [93] S.H. Lam, D.A. Goussis, 1989, “Understanding complex chemical kinetics with computational singular perturbation”, *Proc. Combust. Inst.* 22, pp. 931–941.
- [94] Bibliographie Christopher, J., Greenshields, CFD Direct Ltd., 2015, “OpenFOAM 2.4.0 User Guide,” OpenFOAM Foundation Ltd., Gothenburg, Sweden.
- [95] Jones, W.P. and Musonge, P, 1988, “Closure of the Reynolds stress and scalar flux equations”, *Physics of Fluids*, 31 : 3589–3604.
- [96] Hosseini SE, Bagheri G, Wahid MA., 2014, “Numerical investigation of biogas flameless combustion”, *Energy Convers Manag*, 81, pp. 41–50.
- [97] Borghi, R., Gonzalez, M., 1986, “Applications of Lagrangian models to turbulent combustion”, *Combust. Flame*, 63, pp. 239–250.
- [98] Borghi, R., 1988, “Turbulent combustion modelling”, *Prog Energy Combust Sci*, vol.14, p.245–92.
- [99] Obounou, M., Gonzalez, M., and Borghi, R., 1994, “A Lagrangian Model for Predicting Turbulent Diffusion Flames with Chemical Kinetic Effects,” *Symposium (International) on Combustion*, 25(1), pp. 1107–1113 .
- [100] Fallot, L., Gonzalez, M., Elamraoui, R., Obounou, M., 1997, “Modelling finite-rate chemistry effects in nonpremixed turbulent combustion : test on the bluff-body stabilized flame”, *Combust. Flame*; 110 : 298–314.
- [101] Mouangue, R., Obounou, M., Gnentedem, C., and Njomo, D., 2010, “Numerical Simulation of a Lifted Methane Jet Flame in a Vitiated Coflow : Lagrangian Approach With Detail Chemistry,” *J. Eng. Appl. Sci.*, 5 (3), pp. 211 –220.
- [102] Ruben Mouangue, Obounou Marcel, Gomet Laurent, Mura Arnaud, 2014, “Lagrangian Intermittent Modelling of a turbulent lifted methane-air jet flame stabilized in a vitiated air coflow”, *flow turbulence combust*, 92(3), pp 731–765.
- [103] Bergmann, V., Meir, W., Wolff, D., and Stricker, W., 1998, “Application of Spontaneous Raman and Rayleigh Scattering and 2D LIF for the Characterization of a Turbulent CH₄/H₂/N₂ Jet Diffusion Flame,” *Appl. Phys. B : Lasers Opt.* , 66(4), pp. 489–502.
-

- [104] Chomiak, J., and Karlsson, A., 1996, “Flame liftoff in diesel sprays”, 26th symp.(International) on combustion/The Combustion Institute,pp. 2557-2564.
- [105] Golovichev, V., Nordin, N., Jarnicki, R and Chomiak, J., 2000, “3-D Diesel Spray Simulations Using a New Detailed CHemistry Turbulent Combustion Model, SAE Paper, 2000-01-1891.
- [106] Nordin, N., 2001, “Complex chemistry modeling of diesel spray combustion”, PhD thesis, Dept. of Thermo and Fluid Dynamics, Chalmers University of Technology, Göteborg.
- [107] Golovitchev, V., Chomiak J., 2001, “Numerical modeling of high temperature air flameless combustion”, In The 4th international symposium on high temperature air combustion and gasification.
- [108] Christopher J., Greenshields., 2019, “OpenFoam, User Guide version-7”.
- [109] <https://www.sandia.gov/TNF/DataArch/DLRflames.html>

Liste des publications

- 1- **Awakem, D.**, Obounou, M., & Noume, H. C., 2018 “Application of the Computational Singular Perturbation Method to a Turbulent Diffusion CH₄/H₂/N₂ Flame Using OpenFOAM” ASME J. Energy Resour. Technol., 141(4), 042201.
- 2- Gnentedem, C., **Awakem, D.**, Obounou M., Ekobena F, H, P., Njomo, D. (2019), “Application of a reduced mechanism by Computational Singular Perturbation method to the calculation of the ignition delays of a turbulence diffusion flame CH₄/H₂/N₂”, ASME J. Energy Resour. Technol,142(5), 062302.

Application of the Computational Singular Perturbation Method to a Turbulent Diffusion CH₄/H₂/N₂ Flame Using OpenFOAM

David Awakem¹

Department of Physics,
Faculty of sciences,
University of Yaounde I,
Po Box 812,
Yaounde, Cameroon
e-mail: david.awakem@gmail.com

Marcel Obounou

Department of Physics,
Faculty of sciences,
University of Yaounde I,
Po Box 812,
Yaounde, Cameroon
e-mail: marcelobounou@yahoo.fr

Hermann Chopkap Noume

Department of Physics,
Faculty of sciences,
University of Yaounde I,
Po Box 812,
Yaounde, Cameroon
e-mail: noumher@yahoo.fr

This work highlights the ability of the computational singular perturbation (CSP) method to calculate the significant indices of the modes on evolution of species and the degree of participation of reactions. The exploitation of these indices allows us to deduce the reduced models of detailed mechanisms having the same physicochemical properties. The mechanism used is 16 species and 41 reversible reactions. A reduction of these 41 reactions to 22 reactions is made. A constant pressure application of the detailed and reduced mechanism is made in OpenFOAM free and open source code. Following the Reynolds-averaged Navier–Stokes simulation scheme, standard $k-\epsilon$ and partial stirred reactor are used as turbulence and combustion models, respectively. To validate the reduced mechanism, comparison of numerical results (temperature and mass fractions of the species) was done between the detailed mechanism and the simplified model. This was done using the DVODE integrator in perfectly stirred reactor. After simulation in the computational fluid code dynamic (CFD) OpenFOAM, other comparisons were made. These comparisons were between the experimental data of a turbulent nonpremixed diffusion flame of type “DLR-A flame,” the reduced mechanism, and the detailed mechanism. The calculation time using the simplified model is considerably reduced compared to that using the detailed mechanism. An excellent agreement has been observed between these two mechanisms, indicating that the reduced mechanism can reproduce very well the same result as the detailed mechanism. The accordance with experimental results is also good. [DOI: 10.1115/1.4041841]

Keywords: computational singular perturbation, nonpremixed diffusion flame, OpenFOAM, perfectly stirred reactor, reduced mechanism

1 Introduction

The simulation of chemical systems with detailed kinetics can be costly (in computing time and memory space) from a computer point of view. A chemical kinetics mechanism for hydrocarbon oxidation can be composed of hundreds of species and thousands of elemental reactions; the mechanism used in this work involves 16 species and 41 reversible reactions [1]. Simulations of kinetics of perfectly homogeneous systems involving kinetic mechanisms of such complexity can now be solved with computers of very large capacity. However, the inclusion of a moderately complex detailed mechanism in the numerical simulation of reactive flows makes the informatics (Computing) cost extremely high. Simulation is further complicated when there are highly reactive radicals; they induce a significant stiffness of equations governing reactive flows due to different characteristic times of species. As a result, it is necessary to develop the reduced mechanisms. The simplified model can be realized by several mathematical methods. Over the years, a large number of reduction methods have been proposed and applied in machine code [2,3]. These methods are generally based on two approaches: skeletal analysis and characteristic time analysis. The skeletal analysis method eliminates species and less important reactions. We can mention among others: sensitivity analysis [4–6], Jacobian analysis [7], directed relationship graph (DRG) [8–10], DRG with error propagation

[11], DRG-aided sensitivity analysis [12–14], and path-flow analysis [15]. Another reduction approach is based on the analysis of characteristic times; by identifying and removing species and fast reactions, computing costs can be reduced by replacing differential equations with algebraic equations. Many methods are based on the classical quasi-steady state (QSS) [16,17], and partial equilibrium approximations [18]. Several approaches have been proposed to identify QSS species [19–26]. Examples include the intrinsic low-dimensional manifolds [27,28], rate-controlled constrained-equilibrium [29–33], and computational singular perturbation (CSP) [23,34–39]. The CSP method is based on the dynamics of the systems. It has the advantage of being a mathematical and programmable procedure. The objective of this study was the implementation of the CSP method and its application in the computational fluid code dynamic (CFD) OpenFOAM code.

2 Presentation of the Computational Singular Perturbation Method

The method is based on the idea that a large part of the elementary reactions can be grouped into different groups or modes of reaction, each of which is identified by a unique characteristic time. To do this, the R terms of

$$g = \sum_{r=1}^R S_r F^r \quad (1)$$

are projected in N linearly independent groups, which will be separated, for a given time, in fast groups and in slow groups, where

¹Corresponding author.

Contributed by the Advanced Energy Systems Division of ASME for publication in the JOURNAL OF ENERGY RESOURCES TECHNOLOGY. Manuscript received June 19, 2018; final manuscript received October 16, 2018; published online November 19, 2018. Assoc. Editor: Reza Sheikhi.

S_r is the vector of the stoichiometric coefficient of the r th reaction and F^r the reaction rate of the r th reaction where R and N , respectively, represent the number of elementary reactions and the number of chemical species.

Computational singular perturbation makes use of the fact that g is of size N and, therefore, can be represented using any base of N vectors. Thus, for a given set of elementary reactions, the velocity g is unique, but can be represented in many ways. The question that arises then is that of the existence of an optimal representation of g . In other words, is there an ideal basis for representing g ?

2.1 Basic Vectors. Let $a_i(t), i = 1, \dots, N$ be a set of N column vectors of sizes N , which are linearly independent. The set of line vectors $b^i(t), i = 1, \dots, N$ can be calculated from the orthogonality relation

$$b^i \circ a_i = \delta_{ij}, \quad i, j = 1, \dots, N \quad (2)$$

where \circ is the scalar product in a space of dimension N , and $\delta_{ij}, i, j = 1, \dots, N$ is the identity matrix of size N .

In this base, g can be written as

$$g = \sum_{i=1}^N a_i f^i \quad (3)$$

where f^i is the projection of g along a_i , f^i is given by

$$f^i = b^i \circ g, \quad i = 1, \dots, N \quad (4)$$

$$= \sum_{r=1}^R B_r^i F^r, \quad i = 1, \dots, N \quad (5)$$

where $B_r^i = b^i \circ S_r, i = 1, \dots, N$

Each term of the sum, in Eq. (3), no longer represents, as in Eq. (1), an elementary reaction, but a reaction group, a_i and f^i being, respectively, the direction and the amplitude of i th group.

Equation (5) shows that f^i is a linear combination of elementary reaction rates, often referred to as the speed of the i th reaction group.

The problem then is to determine a_i and therefore $b^i, i = 1, \dots, N$ so that:

- To each time f^i , a unique characteristic time is associated.
- When a reaction group tends to disappear, its velocity becomes exponentially zero with this characteristic time.

The alternative representation of g that meets all these criteria is said to be optimal.

An acceptable set of basic vectors must not only order the groups according to their speed (the first being the fastest), but also ensure that the residual term of the speed of a group that tends to disappear is negligible.

We can write the evolution of the speed of the group with respect to time. From Eq. (4), we have

$$\frac{df^i}{dt} = \frac{db^i}{dt} \circ g + b^i \circ J \circ g, \quad i = 1, \dots, N \quad (6)$$

where $J = (\partial g / \partial Y)$ is the Jacobian matrix of g and Y , and the species concentrations are represented by the column vector $Y = [Y^1, Y^2, \dots, Y^N]^T$.

Equation (6) can also be written as

$$\frac{df^i}{dt} = \sum_{j=1}^N \Lambda_j^i f^j, \quad i = 1, \dots, N \quad (7)$$

$$\Lambda_j^i = \left[\frac{db^i}{dt} + b^i \circ J \right] \circ a_j, \quad i, j = 1, \dots, N$$

We can also write the evolution of b^i

$$\frac{db^i}{dt} = \sum_{j=1}^N \Lambda_j^i b^j - b^i \circ J, \quad i = 1, \dots, N \quad (8)$$

The nonlinearity of g is manifested by the fact that J is not usually a constant matrix. At each time t , the eigenvalues of J can be computed; otherwise, they can be approximated by the elements of the diagonal of the matrix $\Lambda_j^i; i, j = 1, \dots, N$ the inverse of these eigenvalues λ_i , denoted $\tau(i)$, has the dimension of time and is called characteristic time [40].

Ordering them in ascending order in absolute value, we obtain: $|\tau(1)| < |\tau(i)| < |\tau(N)|$, which gives a hierarchy of group speeds. The smaller the characteristic time, the faster is the group.

We can now characterize an ideal basis, which must diagonalize $\Lambda_j^i, i, j = 1, \dots, N$, the diagonal elements being arranged in decreasing order, and thus decoupling all the groups.

For a nonlinear problem, the eigenvectors depend on time and do not diagonalize $\Lambda_j^i, i, j = 1, \dots, N$. In this case, we search for the basic vectors such that $\Lambda_j^i, i, j = 1, \dots, N$, is a block-diagonal matrix such that the fast groups and the slow groups are mixed as least as possible. Indeed, from a pragmatic point of view, it is not necessary to decouple all groups. It is sufficient to decouple the fast groups from the slow groups so that the groups remaining coupled are negligible at the desired precision. The coupling of the fast groups between them (or slow groups between them) does not pose difficulties and can be tolerated.

2.2 Classification of the Groups. In general, for a given resolution time $\Delta t = \tau(M)$, three types of groups are distinguished: the fast groups to be eliminated, the active groups, and the dormant groups.

If $\tau(i)$ is the characteristic time of the i th group, we assume

$$\tau(m) \ll \tau(k), \quad m = 1, \dots, M, \quad k = M + 1, \dots, N$$

The integer M being such that

$$|\tau(m)| < \Delta t \quad m = 1, \dots, M$$

The remaining $(N-M)$ groups are kept in the simplified script system. Nevertheless, the amplitude of some of these slow groups can be very small and even turn to zero. Their contribution in g then becomes negligible; they are the dormant groups (in general, we do without them).

2.3 Projection Matrix. The set of basis vectors $a_i(M)$ and $b^i(M)$ defined below is an "improvement" over the original trial set, $a_i^0(M)$ and $b_i^0(M)$

$$b^m(M) = b_0^m + \sum_{J=M+1}^N P_J^m(M) b_0^J, \quad m = 1, 2, \dots, M \quad (9)$$

$$a_J(M) = a_J^0 - \sum_{n=1}^M a_n^0 P_J^n(M), \quad J = M + 1, \dots, N \quad (10)$$

$$b^I(M) = b_0^I - \sum_{n=1}^M q_n^I(M) b_0^n, \quad I = M + 1, \dots, N \quad (11)$$

$$a_m(M) = a_m^0 + \sum_{J=M+1}^N a_J q_m^J(M), \quad m = 1, 2, \dots, N \quad (12)$$

With

$$q_m^I(M) = \sum_{n=1}^M \Lambda_n^I \tau_m^n(M), \quad m = 1, 2, \dots, M; \quad I = M + 1, \dots, N$$

$$P_J^m(M) = \sum_{n=1}^M \tau_n^m(M) \wedge^n, \quad m = 1, 2, \dots, M; \quad J = m + 1, \dots, N$$

And $\tau_n^m(M)$ is the inverse of $\omega_n^m(M) = \wedge_n^m(M)$; $n, m = 1, 2, \dots, M$.

The left and right eigen-vectors of J at $t=0$ are always available to be the initial trial basis vectors for $t \geq 0$. From the programming point of view, it is straightforward to use the freshly computed set of refined basis vectors at the end of every integration time-step to be the new trial set of constant basis vectors for the next time-step [39].

Let $a_i, b^i, i = 1, \dots, N$, be the “ideal” bases found and M the number of fast groups that tend to disappear. The following projection matrices can be calculated:

- projection on the group $m, m = 1, \dots, M$

$$Q_m(M) = a_m \circ b^m \quad (13)$$

- projection on the subspace of fast groups

$$Q_m(M) = \sum_{m=1}^M a_m \circ b^m \quad (14)$$

$$= \sum_{m=1}^M Q_m \quad (15)$$

The deduction of the projection matrix on the subspace of slow groups, i.e., $(I - Q(M))$, is easily done. These matrices are of size $N \times N$. Thus, for C vector column of L vector line, we have the following decomposition:

$$C = C_{\text{fast}} + C_{\text{slow}} \quad (16)$$

$$L = L_{\text{fast}} + L_{\text{slow}} \quad (17)$$

with $C_{\text{fast}} = Q(M) \circ C$ $L_{\text{fast}} = L \circ Q(M)$

$$C_{\text{slow}} = [(I - Q(M))] \circ C \quad L_{\text{slow}} = L \circ [(I - Q(M))]$$

2.4 Radical-Computational Singular Perturbation. A radical-CSP is a species whose ordinary differential equation can be replaced by a state equation. Very often, the radical-CSP is a radical in the sense of Williams (chemical species which is neither initial reactant nor main product). The CSP method makes it possible to identify the radicals that can be deduced from a state equation given by Eq. (13). So, we have a pointer on the radical-CSP noted $Q_m(i), m = 1, \dots, M$.

$Q_m(i)$ is the i th element of the diagonal of the matrix Q_m (it is in fact $Q_m(i, i)$). It should be noted that $Q_m(i)$ is dimensionless and the sum on the N components is 1 or 0. Geometrically, $Q_m(k)$ is a measure of the projection of the k th unit vector on the same reaction group. Whenever $Q_m(k)$ is not small (in front of the unit), the species number k is called radical-CSP. Note that the quality of this information depends on the quality of the database.

2.5 Simplified Model. Once the ideal base and the projection matrices are obtained, the projection of the global velocity vector can be performed. We have

$$\begin{aligned} g &= g_{\text{fast}} + g_{\text{slow}} \\ &= Q(M) \circ g + [(I - Q(M))] \circ g \\ &= \sum_{m=1}^M a_m f^m + \sum_{k=M+1}^N a_k f^k \end{aligned} \quad (18)$$

where M is the number of fast groups that are excluded from all active groups for a given time.

Let C_r be the projected vector of S_r on the subspace of slow groups, we have

$$C_r = [(I - Q(M))] \circ S_r \quad (19)$$

Physically, it can be interpreted as the vector of the effective or reduced stoichiometric coefficients of the reaction. This allows us to write

$$g_{\text{slow}} = \sum_{r=1}^R C_r F^r \quad (20)$$

The simplified model is therefore governed by the system

$$\frac{dY}{dt} \approx g_{\text{slow}} \quad (21)$$

2.6 Significance Index. Once the optimal representation of g is obtained, one of the following questions can be asked:

- What is the importance of the j th group of reactions on the evolution of the i th reactant?

To answer it, it is enough to evaluate the following quantity:

$$K^i = \frac{|a_j^{ij}|}{\sum_{k=1}^N |a_k^{ik}|} \quad i, j = 1, \dots, N \quad (22)$$

- What is the importance of the r th reactions on the evolution of the i th reactant?

To answer it, we need to evaluate the next quantity

$$I^i = \frac{|C_r^i F^r|}{\sum_{r=1}^R |C_r^i F^r|} \quad (23)$$

$$i = 1, \dots, N, r = 1, \dots, R$$

These quantities are found between 0 and 1, and their importance is all the more significant as they are close to 1.

2.7 Participation Index. The participation index allows us to know the importance of the elementary reaction i of the reaction group j when the representation of g is optimal.

This degree of participation is measured by the participation index written as

$$P^i = \frac{|B_r^i F^r|}{\sum_{r=1}^R |B_r^i F^r|} \quad (24)$$

$$i = 1, \dots, N, r = 1, \dots, R$$

2.8 Minimum System. Since the simplified system, generated by CSP, is acquired, the participation and important indices are used to identify the minimum set of species and the minimum set of reactions that must be taken into account to form the system.

3 Numerical Simulations

The calculations for the application of the two mechanisms of chemical kinetics (reduced and detailed) are made using Open

Table 1 Simplified mechanism by CSP

		Reactions considered	A mol, cm ³ , s	b	E cal/mol
1	#1	H + O ₂ ⇌ OH + O	1.59 × 10 ¹⁷	-0.9	16874.0
2	#2	O + H ₂ ⇌ OH + H	3.87 × 10 ⁴	2.7	6262.0
3	#3	OH + H ₂ ⇌ H ₂ O + H	2.16 × 10 ⁸	1.5	3430.0
4	#7	H + O ₂ + M ⇌ HO ₂ + M	7.00 × 10 ¹⁷	-0.8	0.0
5	#8	HO ₂ + H ⇌ OH + OH	1.50 × 10 ¹⁴	0.0	1004.0
6	#9	HO ₂ + H ⇌ H ₂ + O ₂	2.50 × 10 ¹³	0.0	693.0
7	#10	HO ₂ + O ⇌ O ₂ + OH	2.00 × 10 ¹³	0.0	0.0
8	#11	HO ₂ + OH ⇌ H ₂ O + O ₂	6.02 × 10 ¹³	0.0	0.0
9	#12	H ₂ O ₂ + M ⇌ OH + OH + M	1.00 × 10 ¹⁷	0.0	45,411.0
10	#13	CO + OH ⇌ CO ₂ + H	1.51 × 10 ⁷	1.3	-758.0
11	#18	HCO + O ₂ ⇌ HO ₂ + CO	4.20 × 10 ¹²	0.0	0.0
12	#19	HCO + M ⇌ H + CO + M	1.86 × 10 ¹⁷	-1.0	16,993.0
13	#20	CH ₂ O + H ⇌ HCO + H ₂	1.26 × 10 ⁸	1.6	2175.0
14	#21	CH ₂ O + O ⇌ HCO + OH	3.50 × 10 ¹³	0.0	3513.0
15	#22	CH ₂ O + OH ⇌ HCO + H ₂ O	7.23 × 10 ⁵	2.5	-970.0
16	#30	CH ₃ + HO ₂ ⇌ CH ₃ O + OH	2.28 × 10 ¹³	0.0	0.0
17	#33	CH ₄ + H ⇌ CH ₃ + H ₂	7.80 × 10 ⁶	2.1	7744.0
18	#34	CH ₄ + O ⇌ CH ₃ + OH	1.90 × 10 ⁹	1.4	8676.0
19	#36	CH ₄ + OH ⇌ CH ₃ + H ₂ O	1.50 × 10 ⁶	2.1	2438.0
20	#37	CH ₄ + HO ₂ ⇌ CH ₃ + H ₂ O ₂	4.60 × 10 ¹²	0.0	17,997.0
21	#40	CH ₃ O + O ₂ ⇌ CH ₂ O + HO ₂	4.28 × 10 ⁻¹³	7.6	-3528.0
22	#41	CH ₃ O + M ⇌ CH ₂ O + H + M	1.00 × 10 ¹⁴	0.0	25,096.0

source code, OpenFOAM version 2.40 [41], based on the method of the finished volumes. This code is based on an open source C++ class library; the SIMPLE algorithm and the Gaussian integration scheme of the second order are used. The solver dedicated to the problems of reactive flow of combustion is the solver reactingFOAM; it is used here for our different cases of simulations. For the numerical methods, we followed a Reynolds-averaged Navier–Stokes approach. Since it is for us to simulate a nonpremixed turbulent flame, we use the standard turbulence model $k-\epsilon$, which has two transport equations written in k and ϵ and combustion model partial stirred reactor, to take into account the chemistry–turbulence interaction. The partial stirred reactor model developed by Sabel’nikov and Figueira da Silva [42] is based on the eddy dissipation concept based on the separation, within a fluid control volume (or reactor), between micromixture structures and surrounding structures, and the canonical representation of the homogeneous reactor—perfectly stirred reactor.

In OpenFOAM, there are code lines in the library for executing parallel calculations based on the message passing interface. The current calculations were made using 4 cores of 3.2 GHz each, in parallel, on a computer type core i5 whose RAM is 8 GB. In general, it took about eight days with the detailed mechanism and two to three days with the reduced mechanism so that the numerical simulations are statistically convergent.

Using the Gmsh code, a 2D-axisymmetric mesh representative of the computation domain of the “DLR-A flame” with a length of 1 m, a radius of 4 mm, and an angle of 5 deg in the azimuthal direction is generated. This is considered to isolate wall effects on flame structure, based on experimental data. In this case, the independent solution cells are established using 72 nodes in radial direction and 110 nodes in the axial direction. The boundary conditions used “zerogradient” to the walls, and “wedge” to the front and back of our axis-symmetric mesh; and conditions at the inputs and outputs of the domain depend on the chosen variable.

4 Results and Discussion

This section presents the results of the method in two steps: (i) by comparing the results of the reduced and detailed mechanisms using the DVODE integrators, (ii) a simulation of both mechanisms is done in the OpenFOAM free CFD code and the results are compared to experimental data for a turbulent, nonpremixed diffusion flame of the type “DLR-A flame.”

4.1 Computational Singular Perturbation Integration.

During the integration process, at a given precision, reduced mechanisms can be deduced according to the numbers of fast modes. For this calculation, our mechanism is deduced with a precision of $Y_{\text{error}} = 1.0 \times 10^{-7}$. The reduced mechanism contains 16 species and 22 reactions (Table 1). This mechanism was first validated in a perfectly stirred reactor at constant pressure, with the same initial conditions as the detailed mechanism. Figure 1 shows the evolution of temperature and mass fractions of the species with respect to time. We observe a very good agreement between the reduced and detailed mechanism, indicating that the reduced mechanism can reproduce very well the same result as the detailed mechanism.

Rapid ignition is characterized by a rapid rise in temperature with a rapid decrease in the mass fractions of O₂ and CH₄, and a rapid increase in the mass fractions of H₂O and CO₂ products.

For this reaction mechanism, the number of fast modes M changes according to the reaction dynamics of the system. The number of fast modes determined by CSP as a function of time and tolerance varies between 2 and 10. Figure 2 shows an evolution of fast modes as a function of time and the Y_{error} error. Y_{error} is a relative error tolerance parameter used to calculate the Jacobian matrix J and also used for the solving of differential equation system by the DVODE integrator solver.

Given the different tolerances Y_{error} used, it is clear that during the integration, several fast modes M have been determined. By projecting the source term on CSP vectors related to slow modes of the system, the CSP integrator effectively filters the stiffness related to fast modes of the system by granting a step of integration time a little larger. The number of fast modes depends on the Yerror tolerance.

Table 1 gives the reduced mechanism from 41 to 22 reactions, where # N represents the number N of the elemental reaction of the detailed mechanism [1].

In order to validate this reduced mechanism, we applied these mechanisms to a DLR-A flame in CFD OpenFOAM code.

4.2 The Test Case. Here, we model the turbulent diffusion jet flame CH₄/H₂/N₂-air. A study on the evolution of temperature and major species is done following some radial positions and along the central axis of the combustion chamber. Known as DLR-A flame, this flame has been experimentally developed by

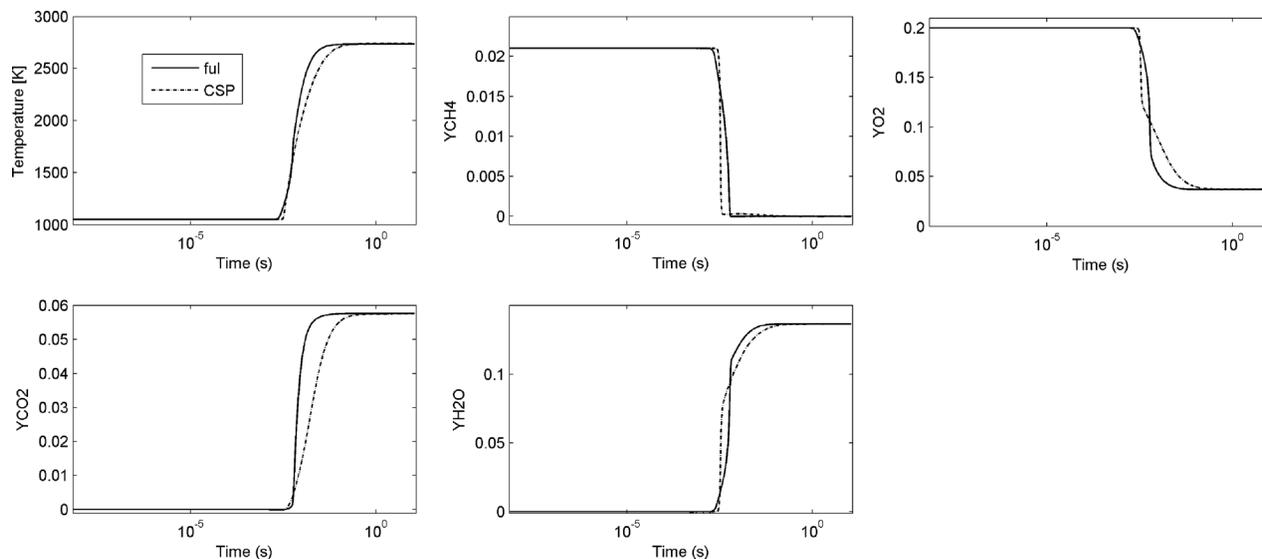


Fig. 1 Evolution of temperature and mass fractions of the majority species, initial conditions $T=1050$ K, $Y_{O_2} = 0.210$, $Y_{CH_4} = 0.020$, $Y_{H_2} = 0.01$, $Y_{N_2} = 0.76900$, and constant pressure $P=1$ atm, with $Y_{error} = 1.0D - 07$

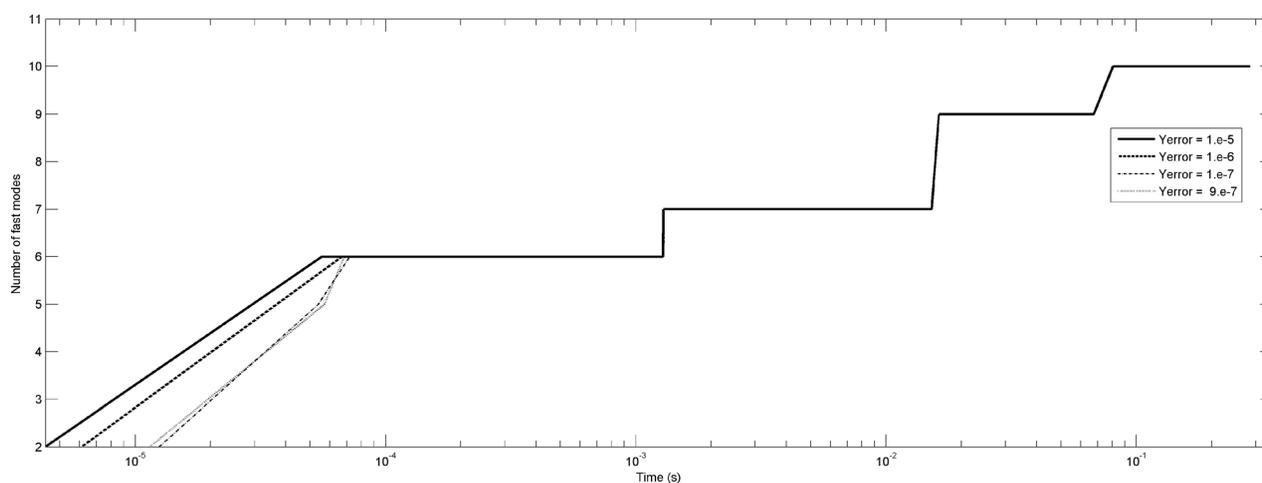


Fig. 2 The number of fast modes M determined by the CSP integrator, for different Y_{error} values

Bergmann et al. [43] and Hassel and Geiß. The fuel is of molar composition: 22.1% CH_4 , 33.2% H_2 , and 44.7% N_2 , emanating from a stainless steel pipe of 8 mm internal diameter with a jet velocity of 42.2 ± 0.5 m/s ($Re = 15,200$). Hydrogen is used in the experiment to stabilize the flame, and the addition of nitrogen is done in order to reduce the thermal radiation and to improve the quality of the experimental measurements. The diameter of the tube and the air flow velocity are respectively 140 mm and 0.3 m/s. Fuel and air both have temperatures at the entrance of 292 K. The pressure used in this work is the ambient pressure of 990 mbar and the stoichiometric mixture fraction is 0.167. Experimental data for Favre temperature and mass average fractions are obtained from the Sandia Laboratories website.² It can be seen that the results calculated with the reduced mechanism are quite in line with those calculated with the detailed mechanism and the experimental flame data (DLR-A Flame) proposed by the Sandia laboratory.

In this subsection, the results of simulations carried out in the OpenFOAM code are compared with the experimental data on

three axial positions: $X/D = 5, 10$, and 20 . The averaged radial quantities of Favre studied here are temperature and mass fractions of CH_4 , H_2 , O_2 , CO_2 , and H_2O as shown in Figs. 3 and 4. These same quantities are evaluated according to the axial profiles as shown in Fig. 5. The temperature distribution and mass fractions of the majority species observed, following the three selected radial positions and along the central axis, are in good agreement with the experimental data both for the skeletal mechanism of Yang and Pope and for the reduced mechanism of the latter by the CSP method. The observation made on the radial and axial evolution of the temperature makes it possible to say that the calculations give rise to a good blooming of the widths of the profiles, which would be explained by the presence, in this zone, of gradients of density and correctly calculated speeds. Moreover, the maximum temperatures are also well estimated, even if we observe a slight discrepancy gap between those calculated by the skeletal mechanism and those calculated by the reduced mechanism. The reduced mechanism being slightly moderate thus induces the temperature peaks slightly lower than those of the detailed mechanism, but remains in very good agreement with the experimental one. The radial distributions of the mass fraction of O_2 are illustrated in Fig. 3. For this one, a very good agreement between

²<https://www.sandia.gov/TNF/DataArch/DLRFflames.html>

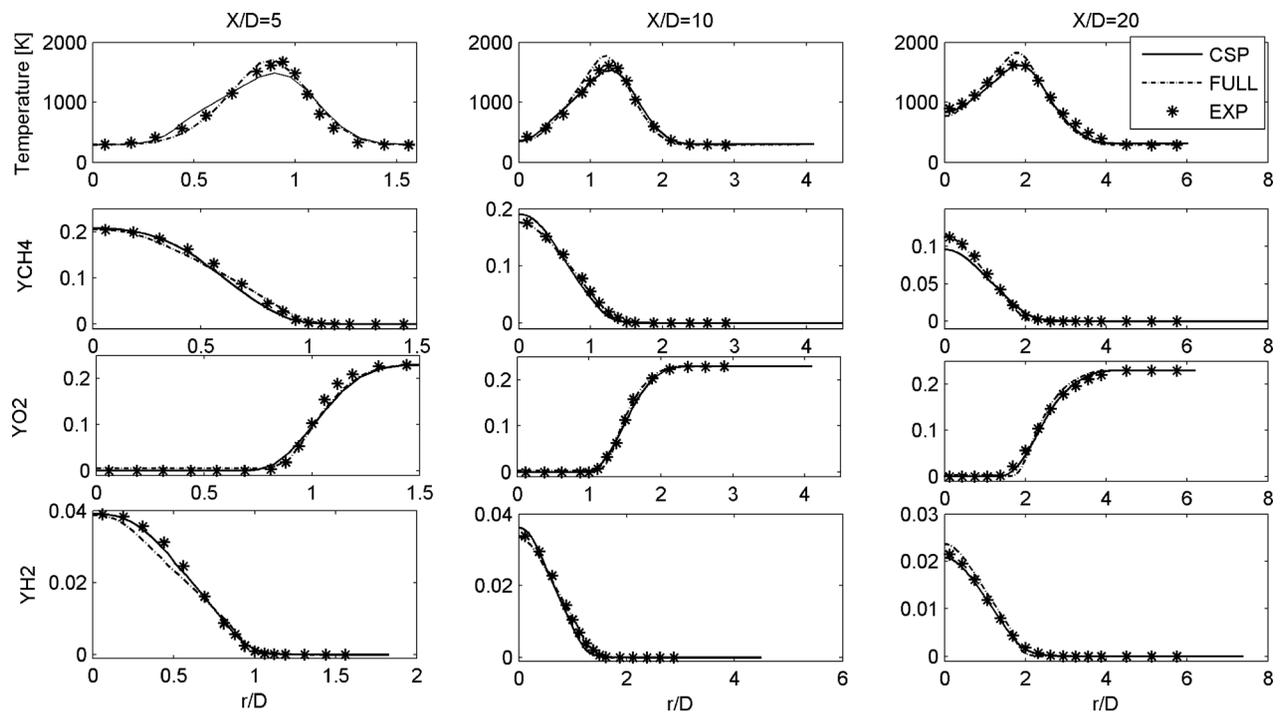


Fig. 3 Radial profile of temperature, and mass fractions of species CH_4 , O_2 , and H_2 , at positions $x/D = 5, 10$ and 20 . Experimental (dashed), reduced mechanism (CSP, Full line), detailed mechanism (FULL, dashed line).

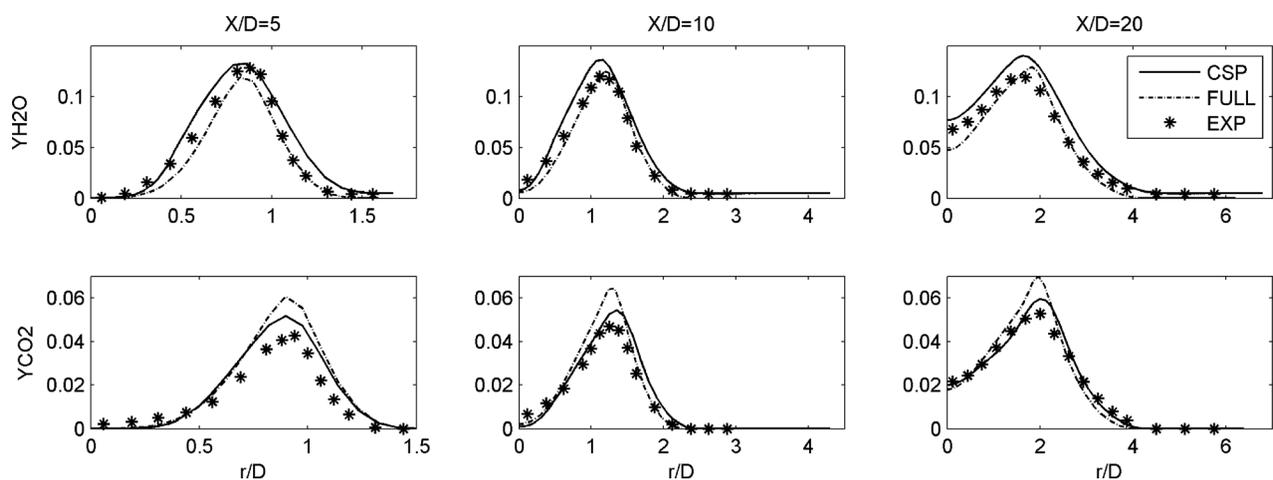


Fig. 4 Radial profile of the mass fractions of the species H_2O and CO_2 , at positions $x/D = 5, 10$, and 20 . Experimental (dashed), reduced mechanism (CSP, full line), detailed mechanism (FULL, dashed line).

the calculations of the different mechanisms and the measurements is noted. With regard to the results of the mass fractions of CO_2 , and of H_2O , the remarks observed in the cases of the radial and axial profiles of temperature remain valid here. For the CH_4 and the H_2 , the calculations estimate well their mass fractions for the positions going from $X/D = 5$ to $X/D = 20$. However, the maximum temperatures are underestimated by about 135 to 238 K along the radial axis and about 55 K along the central axis, by the reduced scheme, as shown in the Figs. 3 and 4. The simulation results confirm that the detailed mechanisms are generally more accurate in describing turbulence–chemistry interactions as the flame evolves, while the reduced mechanism is insufficient to predict some species. The convergence time of the simulations with the reduced mechanism is less than that of the simulations carried out with the detailed mechanism. With the reduced mechanism using the CSP method, the execution time of iterative computations is on average 0.53 s, whereas with the Yang and Pope [1]

mechanism, the execution time by iteration is about 1.76 s, so 3.32 times higher.

5 Conclusion and Directions for Future Research

In this work, the CSP method has been developed to build a reduced mechanism. This numerical method of reducing reactive systems has the advantage of automatically generating all the elements necessary for the writing of the reduced system, to a given accuracy. Indeed, at every moment, the CSP method gives the number of fast modes to eliminate. The indices of participation and importance are calculated and allow the definitive classification of the reactions. Thus, each elemental reaction belongs to all of the partial equilibrium reactions and/or all the reactions that control the system. In the case where it does not belong to any of these two groups (some dormant reactions for example), it is superfluous.

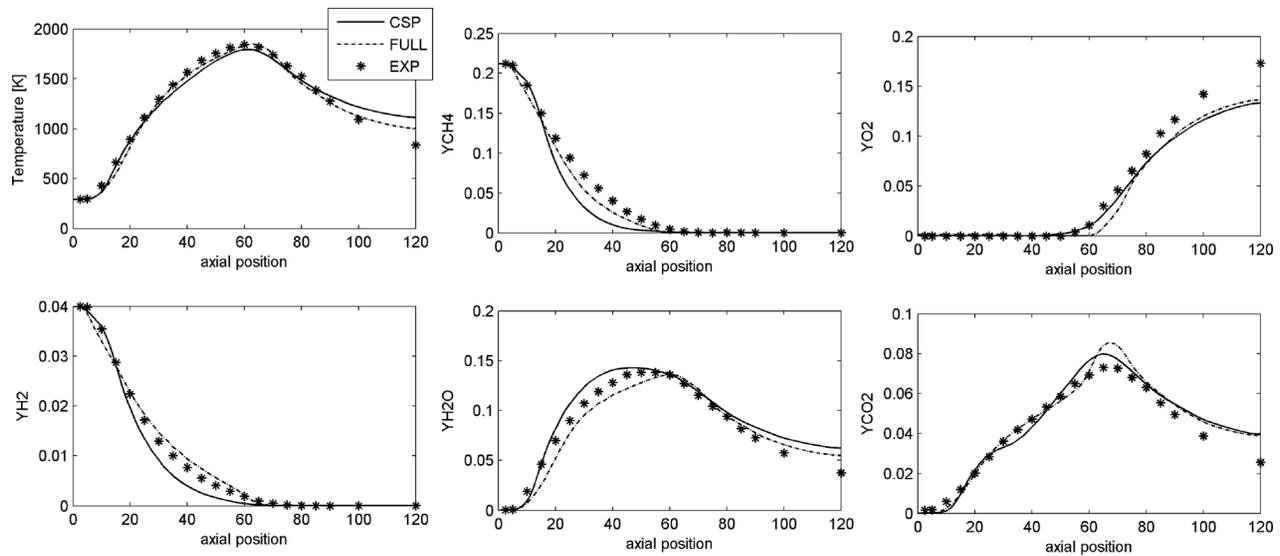


Fig. 5 Axial profile of the temperature and mass fractions of species CH_4 , O_2 , H_2 , H_2O , and CO_2 . Experimental (dashed), reduced mechanism (CSP, Full line), detailed mechanism (FULL, dashed line).

The reduced mechanism was validated in two steps: (i) with the DVODE integrator where a comparison was done between the reduced and detailed mechanism, (ii) the two mechanisms were simulated in an OpenFOAM CFD code (solver reactingFoam) and the numerical results were compared to the experimental data of the DLR-A flame of the Sandia laboratory. The convergence time of the computations was sufficiently reduced by employing the reduced kinetic mechanism for a 2D-axisymmetric numerical simulation, indicating that the reduced kinetic mechanism based on quasi-steady-state assumption can be applied to the analysis of a multidimensional industrial flame with excellent results.

As future work, we will increasingly improve the refinement of low CSP vectors using the work of Kaper et al. [38], and subsequently apply the reduced mechanism in CFD code OpenFOAM with probability density function as a combustion model.

Nomenclature

- a_i = basic vector
- b^i = inverse of a_i
- B^i = product of b^i by S_r
- C = vector column
- C_{fast} = vector column of subspace of slow groups
- C_r = the projected vector of S_r on the subspace of slow groups
- C_{slow} = vector column of subspace of slow groups
- f^j = the amplitude of i th group of reaction
- g = global rate of reaction
- g_{slow} = global rate of reaction of subspace of slow groups
- I = identity matrix
- i^i = important of r th group of reaction on the evolution of the i th reactant
- K^i = important of j th group of reaction on the evolution of the i th reactant
- L = vector line
- L_{slow} = vector line of subspace of slow groups
- L_{fast} = vector line of subspace of fast groups
- M = number of fast group
- N = number of species
- P^i = participation index
- Q_m = projection matrix on the fast subspace
- R = number of elementary reactions
- Re = number of Reynolds
- S_r = vector of the stoichiometric coefficient of the r th reaction

Y_{error} = relative error

λ_i = eigenvalue

τ_i = characteristic time of the i th group of reaction

Abbreviations

- CFD = computational fluid dynamic
- CSP = computational singular perturbation
- DRG = directed relationship graph
- OpenFOAM = Open Field Operation and Manipulation
- PSR = perfectly stirred reactor
- QSS = quasi-steady state
- RAM = random access memory

References

- [1] Yang, B., and Pope, S. B., 1998, "An Investigation of the Accuracy of Manifold Methods and Splitting Schemes in the Computational Implementation of Combustion Chemistry," *Combust. Flame*, **112**(1–2), pp. 16–32.
- [2] Tomlin, A. S., Turanyi, T., and Pilling, M. J., 1998, *Mathematical Tools for Construction, Investigation and Reduction of Combustion Mechanisms*, Elsevier, Amsterdam, The Netherlands.
- [3] Law, C. K., Sung, C. J., and Lu, T. F., 2003, "Development of Comprehensive Detailed and Reduced Reaction Mechanisms for Combustion Modeling," *AIAA J.*, **41**(9), pp. 1629–1646.
- [4] Rabitz, H., Kramer, M., and Dacol, D., 1983, "Sensitivity Analysis in Chemical Kinetics," *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **34**(1), pp. 419–461.
- [5] Turanyi, J., 1990, "Sensitivity Analysis of Complex Kinetic Systems. Tools and Applications," *J. Math. Chem.*, **5**, pp. 203–248.
- [6] Tomlin, A. S., Turanyi, T., and Pilling, M. J., 1997, "Mathematical Tools for the Construction, Investigation and Reduction of Combustion Mechanisms," *Comprehensive Chemical Kinetics*, Elsevier, Amsterdam, The Netherlands, pp. 293–437.
- [7] Turanyi, T., 1990, "Reduction of Large Reaction Mechanisms," *New J. Chem.*, **14**, pp. 795–803.
- [8] Lu, T. F., and Law, C. K., 2005, "A Directed Relation Graph Method for Mechanism Reduction," *Proc. Combust. Inst.*, **30**(1), pp. 1333–1341.
- [9] Lu, T. F., and Law, C. K., 2006, "On the Applicability of Directed Relation Graphs to the Reduction of Reaction Mechanisms," *Combust. Flame*, **146**(3), pp. 472–483.
- [10] Lu, T. F., and Law, C. K., 2006, "Linear Time Reduction of Large Kinetic Mechanisms With Directed Relation Graph: N-Heptane and Iso-Octane," *Combust. Flame*, **144**(1–2), pp. 24–36.
- [11] Pepiot-Desjardins, P., and Pitsch, H., 2008, "An Efficient Error-Propagation-Based Reduction Method for Large Chemical Kinetic Mechanisms," *Combust. Flame*, **154**(1–2), pp. 67–81.
- [12] Sankaran, R., HawkeS, E. R., Chen, J. H., Lu, T. F., and Law, C. K., 2007, "Structure of a Spatially Developing Turbulent Lean Methane–Air Bunsen Flame," *Proc. Combust. Inst.*, **31**(1), pp. 1291–1298.
- [13] Zheng, X. L., Lu, T. F., and Law, C. K., 2007, "Experimental Counterflow Ignition Temperatures and Reaction Mechanisms of 1,3-Butadiene," *Proc. Combust. Inst.*, **31**(1), pp. 367–375.
- [14] Pal, P., Wu, Y., Lu, T., Som, S., See, Y. C., and Le Moine, A., 2018, "Multidimensional Numerical Simulations of Knocking Combustion in a

- Cooperative Fuel Research Engine," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **140**(10), p. 102205.
- [15] Manikantachari, K. R. V., Vesely, L., Martin, S., Bobren-Diaz, J. O., and Vasu, S., 2018, "Reduced Chemical Kinetic Mechanisms for Oxy/Methane Supercritical CO₂ Combustor Simulations," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **140**(9), p. 092202.
- [16] Max, B., 1913, "Eine Theorie der photochemischen Reaktionsgeschwindigkeiten," *Z. Phys. Chem.*, **85**, pp. 329–397.
- [17] D. L., Chapman, L. K., and Underhill, J., 1913, "The Interaction of Chlorine and Hydrogen. The Influence of Mass," *J. Chem. Soc., Trans.*, **103**, pp. 496–508.
- [18] Ramshaw, J. D., 1980, "Partial Chemical Equilibrium in Fluid Dynamic," *Phys. Fluids*, **23**(4), pp. 675–680.
- [19] Sung, C. J., Law, C. K., and Chen, J. Y., 2001, "Augmented Reduced Mechanisms for NO Emission in Methane Oxidation," *Combust. Flame*, **125**, pp. 906–919.
- [20] Lovas, T., Nilsson, D., and Mauss, F., 2000, "Automatic Reduction Procedure for Chemical Mechanisms Applied to Premixed Methane/Air Flames," *Proc. Combust. Inst.*, **28**(2), pp. 1809–1815.
- [21] Soyhan, H. S., Mauss, F., Sorousbay, C., Soyhan, H. S., Mauss, F., and Sorousbay, C., 2002, "Chemical Kinetic Modeling of Combustion in Internal Combustion Engines Using Reduced Chemistry," *Combust. Sci. Technol.*, **174**(11–12), pp. 73–91.
- [22] Mendiara, T., Alzueta, M. U., Millera, A., and Bilbao, R., 2004, "An Augmented Reduced Mechanism for Methane Combustion," *Energy Fuels*, **18**(3), pp. 619–627.
- [23] Massias, A., Diamantis, D., Mastorakos, E., and Goussis, D. A., 1999, "An Algorithm for the Construction of Global Reduced Mechanisms With CSP Data," *Combust. Flame*, **117**(4), pp. 685–708.
- [24] Massias, A., Diamantis, D., Mastorakos, E., and Goussis, D. A., 1999, "Global Reduced Mechanisms for Methane and Hydrogen Combustion With Nitric Oxide Formation Constructed With CSP Data," *Combust. Theory Modell.*, **3**(2), pp. 233–257.
- [25] Lu, T. F., Ju, Y. G., and Law, C. K., 2001, "Complex CSP for Chemistry Reduction and Analysis," *Combust. Flame*, **126**(1–2), pp. 1445–1455.
- [26] Montgomery, C. J., Yang, C. G., Parkinson, A. R., and Chen, J. Y., 2006, "Selecting the Optimum Quasi-Steady-State Species for Reduced Chemical Kinetic Mechanisms Using a Genetic Algorithm," *Combust. Flame*, **144**, pp. 37–52.
- [27] Maas, U., and Pope, S. B., 1992, "Simplifying Chemical Kinetics: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Composition Space," *Combust. Flame*, **88**(3–4), pp. 239–264.
- [28] Bedii Özdemir, İ., 2016, "Use of Computational Combustion in the Development and Design of Energy-Efficient Household Cooker-Top Burners," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **139**(2), p. 022206.
- [29] Keck, J. C., and Gillespie, D., 1971, "Rate-Controlled Partial-Equilibrium Method for Treating Reacting Gas Mixtures," *Combust. Flame*, **17**(2), pp. 237–241.
- [30] Hadi, F., Janbozorgi, M., M.R.H. S., and Metghalchi, H., 2016, "A Study of Interactions Between Mixing and Chemical Reaction Using the Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Method," *J. Non-Equilib. Thermodyn.*, **41**(4), pp. 257–278.
- [31] Beretta, G. P., Janbozorgi, M., and Metghalchi, H., 2016, "Degree of Disequilibrium Analysis for Automatic Selection of Kinetic Constraints in the Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Method," *Combust. Flame*, **168**, pp. 342–364.
- [32] Yu, G., Hadi, F., and Metghalchi, H., 2018, "Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Application in Shock Tube Ignition Delay Time Simulation," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **141**(2), p. 020801.
- [33] Yu, G., Metghalchi, H., Askari, O., and Wang, Z., 2018, "Combustion Simulation of Propane/Oxygen (With Nitrogen/Argon) Mixtures Using Rate-Controlled Constrained-Equilibrium," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **141**(2), p. 022204.
- [34] Lam, S. H., and Goussis, D. A., 1989, "Understanding Complex Chemical Kinetics With Computational Singular Perturbation," *Proc. Combust. Inst.*, **22**(1), pp. 931–941.
- [35] Lam, S. H., and Goussis, D. A., 1994, "The CSP Method for Simplifying Kinetics," *Int. J. Chem. Kinet.*, **26**(4), pp. 461–486.
- [36] Valorani, M., Najm, H. N., and Goussis, D. A., 2003, "CSP Analysis of a Transient Flame-Vortex Interaction: Time Scales and Manifolds," *Combust. Flame*, **134**(1–2), pp. 35–53.
- [37] Valorani, M., Creta, F., Goussis, D. A., and Lee, J. C., 2006, "An Automatic Procedure for the Simplification of Chemical Kinetic Mechanisms Based on CSP," *Combust. Flame*, **146**(1–2), pp. 29–51.
- [38] Kaper, H. G., Kaper, T. J., and Zagaris, A., 2015, "Geometry of the Computational Singular Perturbation Method," *Math. Model. Nat. Phenom.*, **10**(3), pp. 16–30.
- [39] Lam, S. H., and Goussis, D. A., 1991, "In Reduced Kinetic Mechanisms and Asymptotic Approximations for Methane-Air Flames," *Conventional Asymptotics and Computational Singular Perturbation for Simplified Kinetics Modeling* (Lecture Notes in Physics Vol. 384), M. Smooke, ed., Springer-Verlag, Berlin, Chap. 10.
- [40] Rakhshi, A., and Wiltowski, T., 2018, "A Kinetic Assessment of Entrained Flow Gasification Modeling," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **140**(9), p. 092204.
- [41] Christopher, J., Greenshields, CFD Direct Ltd., 2015, "OpenFOAM 2.4.0 User Guide," OpenFOAM Foundation Ltd., Gothenburg, Sweden.
- [42] Sabel'Nikov, V. A., and Figueira da Silva, L. F., 2002, "Partially Stirred Reactor: Study of the Sensitivity of the Monte-Carlo Simulation to the Number of Stochastic Particles With the Use of a Semi-Analytic, Steady-State, Solution to the PDF Equation," *Combust. Flame*, **129**(1–2), pp. 164–178.
- [43] Bergmann, V., Meir, W., Wolff, D., and Stricker, W., 1998, "Application of Spontaneous Raman and Rayleigh Scattering and 2D LIF for the Characterization of a Turbulent CH₄/H₂/N₂ Jet Diffusion Flame," *Appl. Phys. B: Lasers Opt.*, **66**(4), pp. 489–502.

Cyrille Gntedem

Laboratoire d'Énergie et Systèmes
électriques et Électroniques,
Department of Physics,
Faculty of Science,
University of Yaounde I,
P.O. Box 812,
Yaoundé, Cameroon
e-mail: gntedemngafackcyrille@yahoo.fr

David Awakem¹

Laboratoire d'Énergie et Systèmes
électriques et Électroniques,
Department of Physics,
Faculty of Science,
University of Yaounde I,
P.O. Box 812,
Yaoundé, Cameroon
e-mail: david.awakem@gmail.com

Marcel Obounou

Laboratoire d'Énergie et Systèmes
électriques et Électroniques,
Department of Physics,
Faculty of Science,
University of Yaounde I,
P.O. Box 812,
Yaoundé, Cameroon
e-mail: marcelobounou@yahoo.fr

Henri Paul Ekobena Fouda

Laboratory of Biophysics,
Department of Physics,
Faculty of Science,
University of Yaounde I,
P.O. Box 812,
Yaoundé, Cameroon
e-mail: hekobena@gmail.com

Donatien Njomo

Laboratoire d'Énergie et Systèmes
électriques et Électroniques,
Department of Physics,
Faculty of Science,
University of Yaounde I,
P.O. Box 812,
Yaoundé, Cameroon
e-mail: dnjomo@usa.net

Application of a Reduced Singular Perturbation Method to the Calculation of the Ignition Delays of a Turbulence Diffusion Flame CH₄/H₂/N₂

This work presents an application of a reduced chemical kinetic mechanism using computational singular perturbation (CSP) based on the significant indices of the modes on the evolution of species and the degree of participation of reactions. With this approach, the mechanism of Yang and Pope is reduced to 22 reversible reactions (RR22). In this study, the tabulation of ignition delays is made with Yang and Pope mechanism, GRI 3.0, and the reduced mechanism RR22; the results obtained show a good agreement among the three mechanisms. The “Modèle Intermittent Lagrangien” (MIL) necessary to calculate the chemical source term of the transport equation of the species requires the library of ignition delays determined above and a probability density function (PDF) of the mixture fraction presumed by a beta distribution. The scalar variance, one of the key parameters for the determination of the presumed beta function, is obtained by solving its own transport equation with the unclosed scalar dissipation rate modeled using either an algebraic model or a transport equation. All these models are introduced in the computational fluid dynamics “Code-Saturne” to simulate a turbulent CH₄/H₂/N₂ jet flame (DLR Flame A) performed at the Deutsches Zentrum für Luft-und Raumfahrt (DLR), or German Aerospace Center. A set of comparisons is made and the results of simulations show a good agreement among the three mechanisms as well with the experimental data.

[DOI: 10.1115/1.4045478]

Keywords: computational singular perturbation, ignition delays, modèle intermittent lagrangien, dissipation rate, transport, energy conversion/systems, energy extraction of energy from its natural resource, energy storage systems, energy systems analysis, fuel combustion, heat energy generation/storage/transfer, natural gas technology

1 Introduction

Besides the growth of computer power, research teams have struggled to understand and master the physico-chemical processes taking place in combustion and have therefore developed detailed chemical kinetic mechanisms. These mechanisms contain in general many species and reactions; for example, *n*-decane [1] possesses 1216 species and 7920 reactions and GRI 3.0 [2] contains 53 species and 325 reactions. Although the use of powerful computers, the simulation of turbulent combustion with these mechanisms

requires a high computational cost. Therefore, there is a need to develop reduced mechanisms that will save the computation time while keeping the same quality of results as the detailed mechanisms.

There are three approaches of reducing chemical kinetic mechanisms:

- The first is purely chemical, which is based on elementary reaction fluxes or sensitivity [3,4], and principal component analysis [5,6].
- The second is mathematical; here, the kinetic aspect is minimized for computational save; Repro-modeling [7] and intrinsic low-dimensional manifold [8,9] are the two main methods for this type of reduction.
- The third approach that has been considered in this work is a combination of chemistry and mathematics. Many methods

¹Corresponding author.

Contributed by the Advanced Energy Systems Division of ASME for publication in the JOURNAL OF ENERGY RESOURCES TECHNOLOGY. Manuscript received June 25, 2019; final manuscript received November 4, 2019; published online November 19, 2019. Assoc. Editor: Samer F. Ahmed.

are used here; one is the quasi steady-state approximation [10,11]; it is based on time scale analysis. Others are rate-controlled constrained equilibrium (RCCE) [12–22] and computational singular perturbation (CSP) [23–27], which have been used to reduce the stiffness of the system to solve. An algorithm identifies the steady-state of species and fast reactions.

In this work, the reduced mechanism (RR22) using the CSP approach [27] is useful to determine the ignition delays. In addition to RR22, GRI 3.0 and Yang and Pope [28] mechanism were also used to determine the ignition delays necessary to calculate the mean reaction rate of transport equations of species in the case turbulent diffusion flame. The mean reaction rate is modeled by the mean of “modèle Intermittent Lagrangien” (MIL). MIL was introduced by Borghi and Gonzalez [29] and Borghi [30] to address turbulence chemistry interaction effects in non-premixed flames. Later, Obounou et al. [31] extended this model by considering multi-step chemistry and describing partial extinction and re-ignition effects. The model was applied to bluff-body stabilized flames [32] and, more recently, to lifted flame [33]. The Lagrangian model has been implemented by Gomet et al. [34] in the compressible solver N3S-Natur so as to obtain a computational tool capable of computing the transient ignition of rocket engines.

To achieve the calculation of that source term, a probability density function (PDF) of the mixture fraction needs also to be determined. It can either be presumed or obtained by solving the PDF transport equation; however to save the computational cost, the PDF is presumed by the beta function whose shape is entirely determined by the mean mixture fraction and its variance. In Reynolds-averaged Navier–Stokes (RANS), the scalar variance is commonly calculated by solving its own transport equation. The unclosed scalar dissipation rate of the scalar variance transport equation needs to be modeled. This can be done by either a linear algebraic expression or by solving its own transport equation. Several transport equations for the scalar dissipation rate have been published [35–37]. In this work, it is the transport equation proposed by Jones and Musonge, and an algebraic model that has been considered for the calculation of the scalar dissipation rate of the variance of the mixture fraction. The result is then used for the determination of mean reaction rate by MIL model as proposed by Obounou [31], to describe a flame without strong turbulence/chemistry interactions, notably the turbulent CH₄/H₂/N₂ jet flame (Deutsches Zentrum für Luft-und Raumfahrt (DLR) Flame A) [38,39]. DLR Flame A has been used to validate many simulations [40]. It has been performed with the laminar flamelet models [41,42]; the numerical results of the resolved mean of the axial velocity, the mixture fraction and the temperature were found to be in very good agreement with the measurement. PDF calculations of DLR Flame A have also been done [43]; generally, good agreement of the PDF results with the experimental data is observed for the velocity, temperature, and the species mass fractions. Ihme et al. [44] employed a flamelet/progress variable combustion model in large Eddy simulation (LES) simulations of DLR Flame A to the study of noise generation. The numerical predictions for both statistical flow field quantities and acoustic results have been validated with experimental data. The laminar flamelet concept was applied by Emami and Eshghinejad Fard [45] to predict mean reactive scalars in a non-premixed turbulent CH₄/H₂/N₂ flame, considering artificial neural networks. Predicted thermo-chemical quantities and experimental measurements were closed, although some discrepancies observed. First-order conditional moment closure was used to model a turbulent, non-premixed methane flames [46]. Although some anomalies related to the difficulties to predict NO, this method showed its capacity of yielding good results. Recently, the DLR Flame A has been simulated using a new LES/PDF code [47]. Overall good agreement between the LES/PDF predictions and the experimental data was observed for the resolved flow fields and the composition fields.

This paper is organized as follows:

In Sec. 2, the CSP method is described; Sec. 3 presents the computational configuration, Favre-averaged balance equations, and the MIL model. The simulation results are presented and discussed in Sec. 4. Finally, in Sec. 5, we give conclusions from the present set of simulation.

2 Presentation of the Computational Singular Perturbation Method

In this section, a brief description of the method is given. The system of chemical reactions can be represented by a system of ordinary differential equations:

$$\frac{dy}{dt} = g(y) = \sum_{j=1}^K S_j F^j(y) \quad (1)$$

where S_j , F^j , y , and g are, respectively, the stoichiometric coefficient, rate reaction, the vector of the concentrations of chemical species, and the source term. This approach is based to separate the eigen vectors a_i of jacobian matrix J in three sub-domains: fast a_r ; slow a_s and dormant a_E : with

$$J = \frac{dg}{dy} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} a_r &= [a_1, a_2, \dots, a_M], & a_s &= [a_{M+1}, a_{M+2}, \dots, a_{N-E}] \\ a_E &= [a_{N-E+1}, a_{N-E+2}, \dots, a_N] \end{aligned} \quad (3)$$

where M , E , and N , respectively, represent the number of CSP radicals, number of chemical elements in the detailed mechanism, and the total number of chemical species in the detailed mechanism.

The fastest species are identified by the “CSP pointer,” that are the components of the diagonal of a matrix defined as follows:

$$Q(M) = [a_1.b^1 + a_2.b^2 + \dots + a_M.b^M] \quad (4)$$

The diagonal components with values closer to the unit correspond to the elements of y , so the chemical species are said to be fast and these are identified by the “pointer–CSP.”

b^k is determined from Eq. (5):

$$b^k.a_k = I, \quad k = (r, s, \text{ and } E) \quad (5)$$

The speed of each reaction group is defined by the following Eq. (6):

$$f^j = \sum_{r=1}^R B_r^j.F^r, \quad j = 1, \dots, N \quad (6)$$

with $B_r^j = b^j.S_r$

Given that C_r is the vector projection of S_r on the slow group subspace, we have

$$C_r = (I - Q(M)).S_r \quad (7)$$

It can be interpreted as reduced stoichiometric coefficients of the reaction. More details of this method can be found in Ref. [27].

2.1 Reduced Mechanism. This reduction approach is based on the analysis: indices of importance of the group of reactions on the evolution of the reactant and the importance of reactions. These quantities are between **0** and **1** and their importance is more and more significant as they are close to **1**.

These parameters are defined by

$$K_j^i = \frac{\|a_j^i.f^j\|}{\sum_{k=1}^N \|a_k^i.f^k\|}, \quad i, j = 1, \dots, N \quad (8)$$

The matrix \mathbf{a}_j^i is subdivided into three groups of reactions: fast, slow, and dormant. For each \mathbf{M} given by the “pointer–CSP,” \mathbf{f}^i is the speed of the i th reaction group and \mathbf{K}_j^i is the importance of the j th group of reactions on the evolution of the i th reactant.

$$K_j^i \approx 0, \quad i = 1, \dots, M, \quad j = 1, \dots, N \quad (9)$$

Equation (9) represents the fast reaction groups to be eliminated from the detailed system.

$$K_j^i \approx 1, \quad i = M + 1, \dots, N - E, \quad j = 1, \dots, N \quad (10)$$

Equation (10) represents the slow reaction groups to be retained for the simplified mechanism.

$$K_j^i \approx 0, \quad i = N - E + 1, \dots, N, \quad j = 1, \dots, N \quad (11)$$

Equation (11) reflects the dormant reaction groups that can be overlooked in the detailed system.

At each integration step, the user must be reassured that Eqs. (9) and (11) are checked, otherwise passed to the next integration step. If these equations are satisfied, we can select the reactions to be preserved by the following relation:

$$I_r^i = \frac{\|C_r^i f^r\|}{\sum_{r=1}^R \|C_r^i f^r\|}, \quad i = 1, \dots, N, \quad r = 1, \dots, R \quad (12)$$

For any value of I_r^i between the \mathbf{I}_{error} and $\mathbf{1}$, with $(I_r^i > \mathbf{I}_{error} > \mathbf{0})$ the reaction \mathbf{r} can be considered in the reduced mechanism.

\mathbf{I}_{error} is a relative error set by the user, it depends on the precision requested. It should be noted that the higher the error, the smaller number of elementary reactions to be preserved in the reduced mechanism, and we will have to observe a larger gap between the numerical solution of reduced and detailed mechanism. This approach allowed us to reduce the mechanism of Yang and Pope [28] to 22 reactions in Table 1 [27].

3 Computational Configuration

RANS equations are applied in this work to simulate the simple turbulent jet flame of $\text{CH}_4/\text{H}_2/\text{N}_2$ at moderate Reynolds number $\mathbf{R}_\nu = 15,200$. The experiments of a turbulent diffusion flame of an $\text{CH}_4/\text{H}_2/\text{N}_2$ composite fuel flame, which have been used for

Table 1 Simplified mechanism by CSP [27]

Reactions considered		A mole, cm^3 , s	b	E cal/mole
1	#1. $\text{H} + \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{OH} + \text{O}$	1.59×10^{17}	-0.9	16,874.0
2	#2. $\text{O} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{OH} + \text{H}$	3.87×10^{04}	2.7	6262.0
3	#3. $\text{OH} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O} + \text{H}$	2.16×10^{08}	1.5	3430.0
4	#7. $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightleftharpoons \text{HO}_2 + \text{M}$	7.00×10^{17}	-0.8	0.0
5	#8. $\text{HO}_2 + \text{H} \rightleftharpoons \text{OH} + \text{OH}$	1.50×10^{14}	0.0	1004.0
6	#9. $\text{HO}_2 + \text{H} \rightleftharpoons \text{H}_2 + \text{O}_2$	2.50×10^{13}	0.0	693.0
7	#10. $\text{HO}_2 + \text{O} \rightleftharpoons \text{O}_2 + \text{OH}$	2.00×10^{13}	0.0	0.0
8	#11. $\text{HO}_2 + \text{OH} \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$	6.02×10^{13}	0.0	0.0
9	#12. $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{M} \rightleftharpoons \text{OH} + \text{OH} + \text{M}$	1.00×10^{17}	0.0	45,411.0
10	#13. $\text{CO} + \text{OH} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{H}$	1.51×10^{07}	1.3	-758.0
11	#18. $\text{HCO} + \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{HO}_2 + \text{CO}$	4.20×10^{12}	0.0	0.0
12	#19. $\text{HCO} + \text{M} \rightleftharpoons \text{H} + \text{CO} + \text{M}$	1.86×10^{17}	-1.0	16,993.0
13	#20. $\text{CH}_2\text{O} + \text{H} \rightleftharpoons \text{HCO} + \text{H}_2$	1.26×10^{08}	1.6	2175.0
14	#21. $\text{CH}_2\text{O} + \text{O} \rightleftharpoons \text{HCO} + \text{OH}$	3.50×10^{13}	0.0	3513.0
15	#22. $\text{CH}_2\text{O} + \text{OH} \rightleftharpoons \text{HCO} + \text{H}_2\text{O}$	7.23×10^{05}	2.5	-970.0
16	#30. $\text{CH}_3 + \text{HO}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3\text{O} + \text{OH}$	2.28×10^{13}	0.0	0.0
17	#33. $\text{CH}_4 + \text{H} \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{H}_2$	7.80×10^{06}	2.1	7744.0
18	#34. $\text{CH}_4 + \text{O} \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{OH}$	1.90×10^{09}	1.4	8676.0
19	#36. $\text{CH}_4 + \text{OH} \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{H}_2\text{O}$	1.50×10^{06}	2.1	2438.0
20	#37. $\text{CH}_4 + \text{HO}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$	4.60×10^{12}	0.0	17,997.0
21	#40. $\text{CH}_3\text{O} + \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_2\text{O} + \text{HO}_2$	4.28×10^{-13}	7.6	-3528.0
22	#41. $\text{CH}_3\text{O} + \text{M} \rightleftharpoons \text{CH}_2\text{O} + \text{H} + \text{M}$	1.00×10^{14}	0.0	25,096.0

model validation, were carried out by Meier et al. [38]. In that experimental study, Raman signals and laser induced fluorescence (LIF) were used for determining the concentrations of the major species and minor species (OH, NO, CO), respectively. On the other hand, Rayleigh signals were used to measure the temperatures. Hydrogen is used in the experiments to stabilize the flame and nitrogen is added to decrease thermal radiation and to improve the quality of measuring techniques.

The burner consisted of a straight stainless steel tube with a length of 35 cm and an inner diameter of 8 mm. The outside of the tube was surrounded by a nozzle used for supplying the co-flowing dry air to the lower part of the flame at an exit velocity of typically 0.3 m/s. The fuel consists of 33.2% H_2 , 22.1% CH_4 , and 44.7% N_2 (by volume) and a bulk velocity of 42.2–0.5 m/s. At the inlet, fuel and air temperatures are both 295 K. The system works at ambient pressure of 990 mbar, and the stoichiometric mixture fraction is 0.167.

The governing equations are discretized and implemented in the Code-Saturne [48] using the finite volume method. The computational domain is $[0; 1 \text{ m}]$, $[0; 0.2 \text{ m}]$, and $[0; 10]$ in the axial, radial, and azimuthal directions (Fig. 1). In this work, the effect of the grid resolution has been examined by the use of four grids: 7600, 38,700, 44,100, and 67,500 cells; they are concentrated near the nozzle in the axial and radial directions.

3.1 Favre-Averaged Balance Equations. This section presents the conservation equations of mass, linear momentum, species written in Cartesian coordinates.

Mass

$$\frac{\partial \bar{\rho}}{\partial t} + \nabla(\bar{\rho}\tilde{u}) = 0 \quad (13)$$

Momentum

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{\rho}\tilde{u}}{\partial t} + \nabla(\bar{\rho}\tilde{u}\tilde{u}) &= \nabla(-pI + \left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_t}\right)(\nabla\tilde{u} + {}^t\nabla\tilde{u})) \\ &\quad - \frac{2}{3}\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_t}\right)\nabla(\tilde{u}I) \end{aligned} \quad (14)$$

Species

$$\frac{\partial \bar{\rho}\tilde{Y}_k}{\partial t} + \nabla(\bar{\rho}\tilde{u}\tilde{Y}_k) = \nabla\left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t}\right)\nabla\tilde{Y}_k\right) + \tilde{\omega}_k \quad (15)$$

Mixture fraction

$$\frac{\partial \bar{\rho}\tilde{\phi}}{\partial t} + \nabla(\bar{\rho}\tilde{u}\tilde{\phi}) = \nabla\left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t}\right)\nabla\tilde{\phi}\right) \quad (16)$$

Variance of mixture fraction

$$\frac{\partial \bar{\rho}\tilde{\phi}''}{\partial t} + \nabla(\bar{\rho}\tilde{u}\tilde{\phi}'') = \nabla\left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t}\right)\nabla\tilde{\phi}''\right) + 2\frac{\mu_t}{\sigma_t}\nabla\tilde{\phi}\nabla\tilde{\phi} - \tilde{\rho}\tilde{\chi} \quad (17)$$

Scalar dissipation rate

The scalar dissipation rate $\tilde{\chi}$ can be modeled through an algebraic expression or by the transport equation.

Algebraic model

$$\tilde{\chi} = R_\tau \frac{\tilde{\epsilon}}{\tilde{\mathcal{K}}} \tilde{\phi}''^2 \quad (18)$$

The constant model \mathbf{R}_τ has been fixed to 0.5.

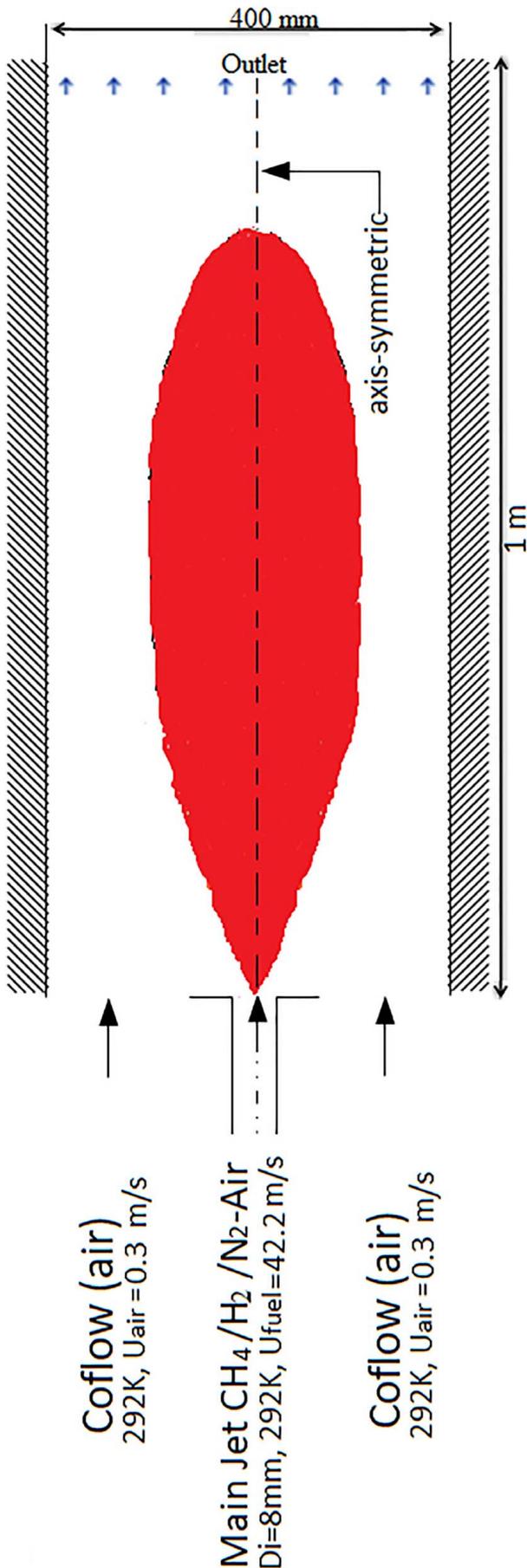


Fig. 1 Flame configuration

Transport equation by Jones [37]

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{\chi}}{\partial t} + \Delta(\bar{\rho} \tilde{u} \tilde{\chi}) = \Delta \left(\left(\frac{\mu}{S_c} + \frac{\mu_t}{\sigma_t} \right) \Delta \tilde{\chi} \right) - C_1 \bar{\rho} \frac{\tilde{\chi}^2}{\phi^{n/2}} - C_2 \bar{\rho}^2 \frac{C_\mu \tilde{\kappa}}{\mu_t} \tilde{\chi} + C_3 \bar{\rho} \frac{C_\mu \tilde{\kappa}}{\sigma_t} (\Delta \tilde{\phi})^2 + C_4 \mu_t \frac{\tilde{\chi}}{\tilde{\kappa}} \|\tilde{S}\|^2 \quad (19)$$

where $\|\tilde{S}\| = \sqrt{2\tilde{S}_{ij}\tilde{S}_{ij}}$. The strain rate tensor is given by $\tilde{S}_{ij} = \frac{1}{2}(\partial\tilde{u}_i/\partial x_j + \partial\tilde{u}_j/\partial x_i)$
Density

$$\bar{\rho} = \frac{P}{R\tilde{T} \cdot \sum_k \frac{\tilde{Y}_k}{M_k}} \quad (20)$$

where P is the operating pressure, R is the universal gas constant, \tilde{T} is the temperature, and M_k is the molecular weight of the species k .

The $\kappa - \varepsilon$ turbulence model is used for turbulence closure in the present study. Here, the value of C_{ε_1} of the ε -transport equation has been modified from 1.44 to 1.60, following the work of McGuirk and Rodi [49,50]. By the way, the Schmidt number of mean mixture fraction and its variance have been fixed to 1.0 and that of species to 0.7. The molecular diffusivity is equal to $2.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$.

3.2 Modèle Intermittent Lagrangien Model. The MIL was employed to calculate the mean reaction rate present in the transport equation of species in the case of non-premixed flames following the expression:

$$\tilde{\omega}_Y = \int_0^1 \tilde{P}(\phi) \int_{\tau_{ig}}^{\infty} \dot{\omega}_Y(\tau, \phi) \tilde{P}_\tau(\tau) d\tau d\phi \quad (21)$$

where $\tilde{P}(\phi)$, $\dot{\omega}_Y(\tau, \phi)$, and $\tilde{P}_\tau(\tau)$, τ_{ig} are the PDF of the mixture fraction ϕ , instantaneous chemical production rates, PDF of turbulent mixing times τ , and chemical delay times, respectively. To determine the mean consumption rate of each species $\tilde{\omega}_Y$, MIL relies on the following hypothesis:

- First, the scalar micro-mixing terms are represented with the “Interaction par Echange avec la Moyenne” (interaction by exchange with the mean value (IEM)) model of Villermaux [51]. Thus, the set of lagrangian equations for mixture fraction and reactive species mass fraction and temperature is

$$\begin{cases} \frac{dY_i}{dt} = \frac{\tilde{Y}_i - Y_i}{\tau_y} + \dot{\omega}_i \\ \frac{dT}{dt} = \frac{\tilde{T} - T}{\tau_T} + \dot{\omega}_T \\ \frac{d\phi}{dt} = \frac{\tilde{\phi} - \phi}{\tau_\phi} \end{cases}$$

- Second, it uses a global reaction assumption for heat release and main species but includes complex chemistry through the delay time.
- At last, the sudden combustion is assumed; it means that the activation energy of the chemical reaction is supposed to be very large; therefore, particles take a finite time to ignite, then instantaneously jump from the mixing line to the equilibrium line (Fig. 2).

From the third hypothesis, the flame structure is constructed dynamically from two possibilities of diffusion combustion: mixing without reaction (before ignition) corresponding to the mixing lines BM and AM and infinitely fast chemistry (after ignition) corresponding to the lines ASF and BLF (Fig. 2). The transition between mixing without combustion and a “mixed is burnt” regime is controlled by the position of an ignition time delay τ_{ig}

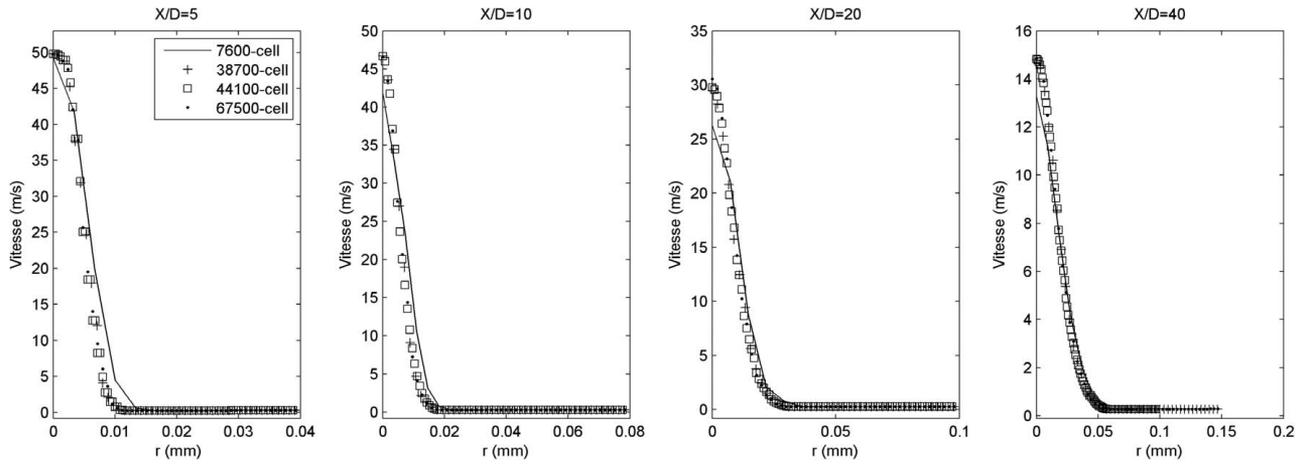


Fig. 4 Radial profiles of axial velocity: 7600 cells (solid line), 38,700 cells (addition symbol), 44,100 cells (square), and 67,500 cells (dash dot dot)

temperature, and mass fractions of CH_4 , H_2 , O_2 , CO_2 , and H_2O are investigated.

Figure 4 compares the radial profiles of the axial velocity. It can be seen that, the finest grids (38,700, 44,100, and 67,500 cells) are quite the same. But, the results corresponding to 7600 cells are quite

different from the three others. Hence, to save computational cost and capture the flow fields, the grid containing 38,700 cells is used to obtain all the results presented below.

From Figs. 5–10, the calculation of the mean temperature and major species are also very similar for the three mechanisms

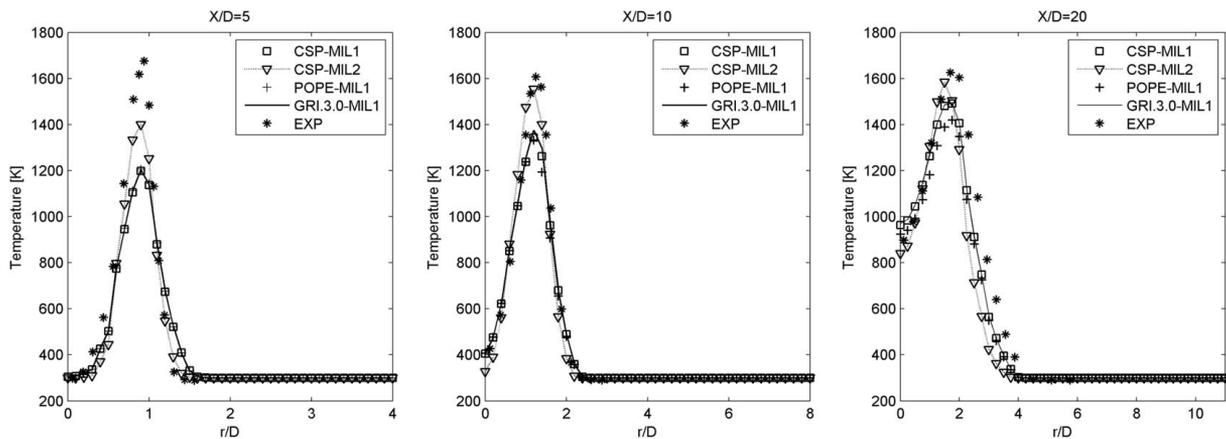


Fig. 5 Radial profile of temperature, at positions $x/D = 5, 10,$ and 20 ; reduced mechanism–algebraic model (CSP–MIL1, square), reduced mechanism–transport equation (CSP–MIL2, triangle dashed line), Pope et al. mechanism–algebraic model (Pope–MIL1, addition symbol), GRI 3.0 mechanism–algebraic model (GRI 3.0–MIL1, line), and experimental (dashed)

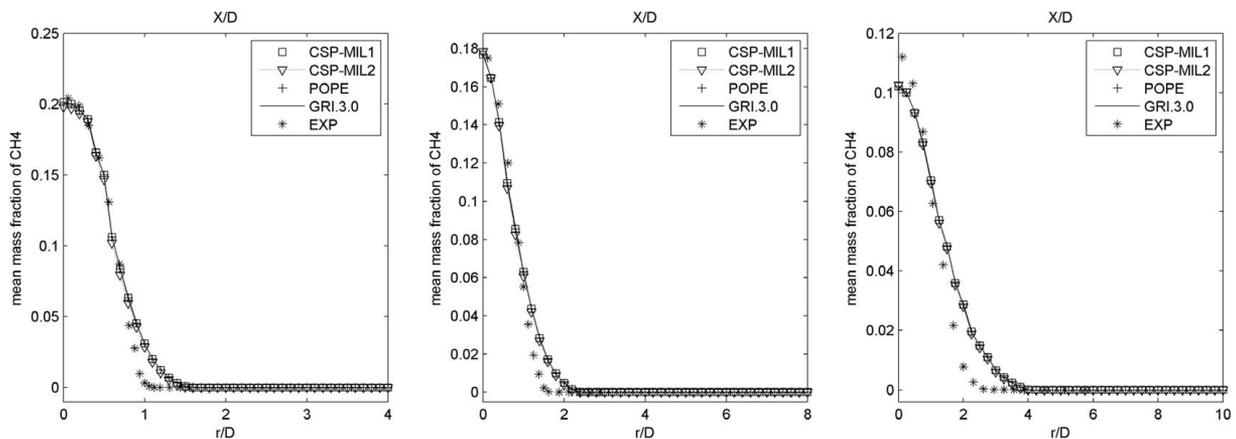


Fig. 6 Radial profile of mean mass fraction of CH_4 , at positions $x/D = 5, 10,$ and 20 ; reduced mechanism–algebraic model (CSP–MIL1, square), reduced mechanism–transport equation (CSP–MIL2, triangle dashed line), Pope et al. mechanism–algebraic model (Pope–MIL1, addition symbol), GRI 3.0 mechanism–algebraic model (GRI 3.0–MIL1, line), and experimental (dashed)

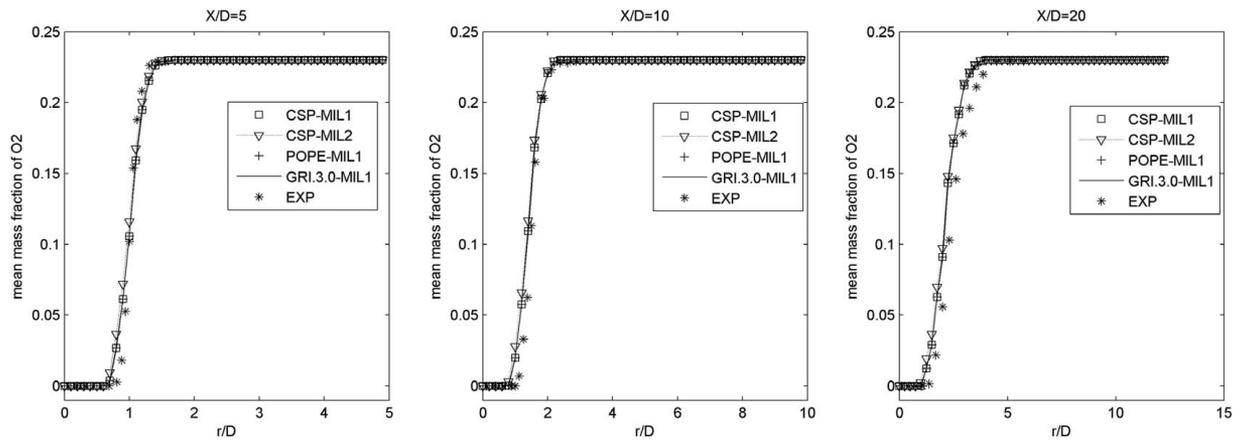


Fig. 7 Radial profile of mean mass fraction of O_2 at positions $x/D = 5, 10,$ and 20 ; reduced mechanism–algebraic model (CSP–MIL1, square), reduced mechanism–transport equation (CSP–MIL2, triangle dashed line), Pope et al. mechanism–algebraic model (Pope–MIL1, addition symbol), GRI 3.0 mechanism–algebraic model (GRI 3.0–MIL1, line), experimental (dashed)

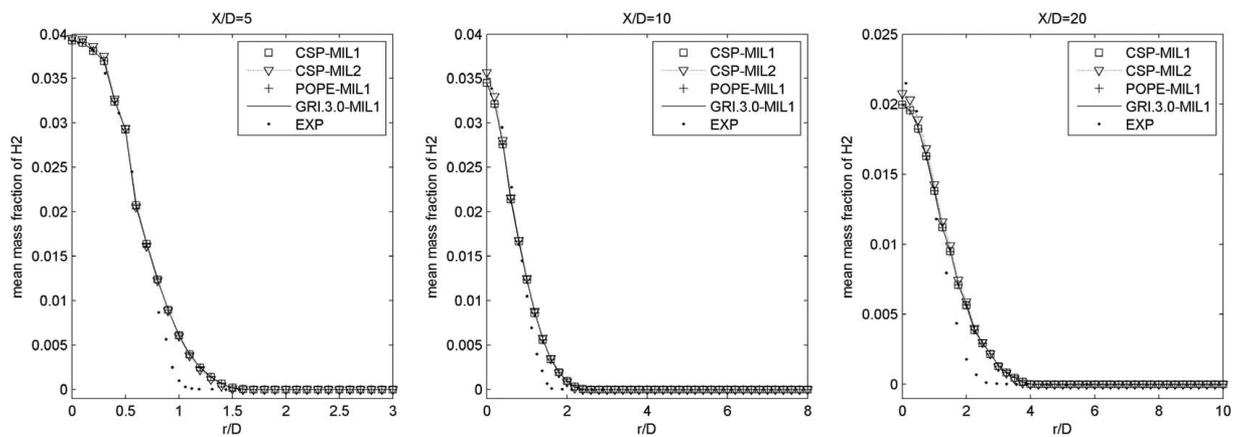


Fig. 8 Radial profile of mean mass fraction of H_2 , at positions $x/D = 5, 10,$ and 20 ; reduced mechanism–algebraic model (CSP–MIL1, square), reduced mechanism–transport equation (CSP–MIL2, triangle dashed line), Pope et al. mechanism–algebraic model (Pope–MIL1, addition symbol), GRI 3.0 mechanism–algebraic model (GRI 3.0–MIL1, line), and experimental (dashed)

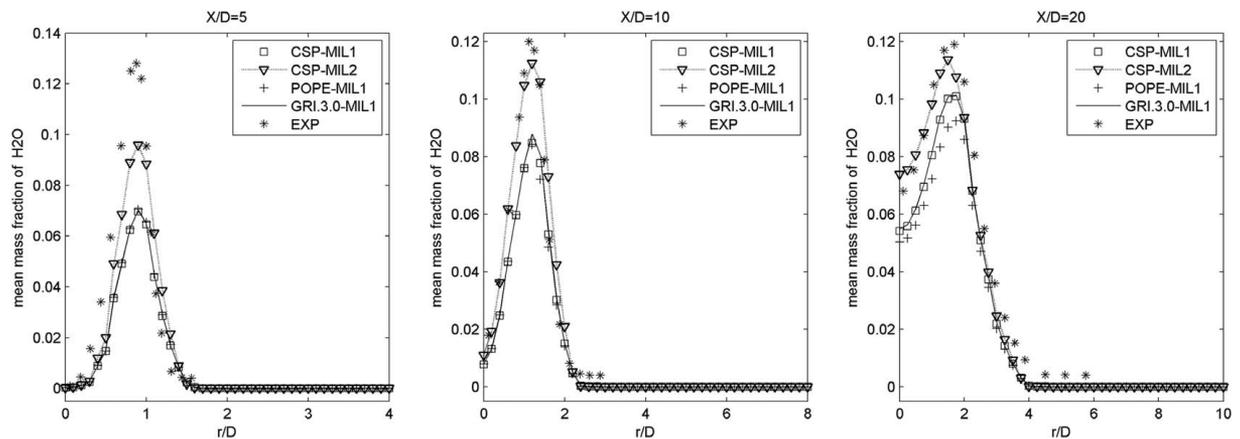


Fig. 9 Radial profile of mean mass fraction of H_2O , at positions $x/D = 5, 10,$ and 20 ; reduced mechanism–algebraic model (CSP–MIL1, square), reduced mechanism–transport equation (CSP–MIL2, triangle dashed line), Pope et al. mechanism–algebraic model (Pope–MIL1, addition symbol), GRI 3.0 mechanism–algebraic model (GRI 3.0–MIL1, line), and experimental (dashed)

(GRI 3.0, Yang, and reduced mechanism from CSP). In addition, the radial profiles of CH_4 and H_2 are generally in good agreement with those of the measurement at different positions. Nevertheless, the mean mass fractions of CH_4 and H_2 are overpredicted at $X/D = 5$ at 10 for certain values of r/D , and underpredicted elsewhere. As for

O_2 , the simulations give good predictions with a slight underprediction observed at $X/D = 20$.

Concerning the mean temperature (Fig. 5) and mass fractions of H_2O (Fig. 9) and CO_2 (Fig. 10), the results of the simulation at $X/D = 5$ and 10 are very similar for the different mechanisms, but

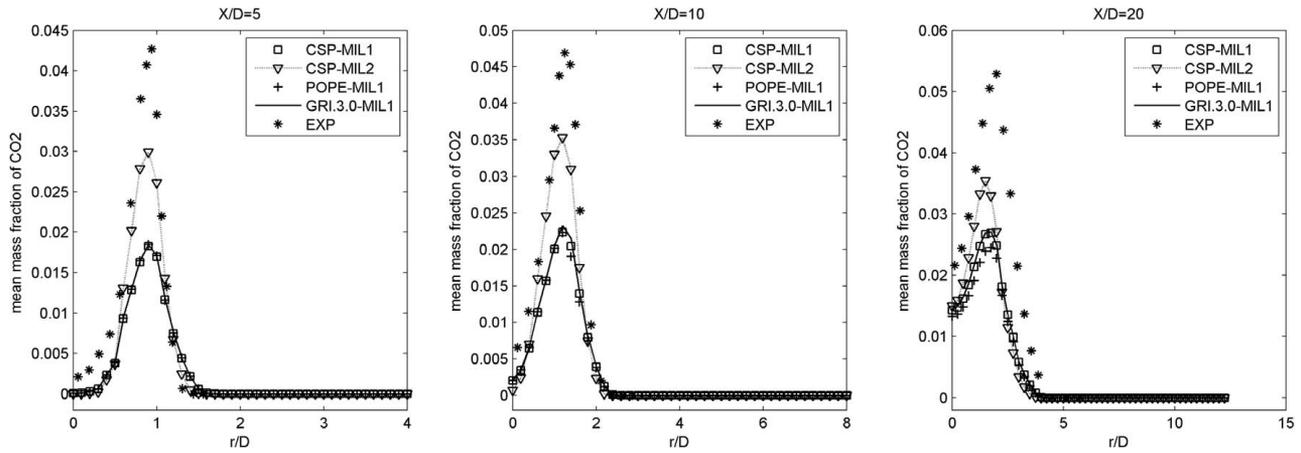


Fig. 10 Radial profile of mean mass fraction of CO₂, at positions $x/D = 5, 10,$ and 20 , reduced mechanism–algebraic model (CSP–MIL1, square), reduced mechanism–transport equation (CSP–MIL2, triangle dashed line), Pope et al. mechanism–algebraic model (Pope–MIL1, addition symbol), GRI 3.0 mechanism–algebraic model (GRI 3.0 –MIL1, line), and experimental (dashed)

at $X/D = 20$, we observed a gap between Yang and Pope mechanism and reduced mechanism.

These (Figs. 5, 9, and 10) also show the effect of the model used to calculate the scalar dissipation rate of variance on the temperature (Fig. 5), CO₂ (Fig. 10), and H₂O (Fig. 9); the radial profiles at the different locations are in much better agreement with experimental data with the transport equation. These mean quantities are under-predicted with the algebraic model. As for the mean mass fraction of CO₂ whatever the model, its peak is very under-predicted at the different positions. It can be attributed to the fact that the CO is also produced during the combustion.

Although there is good agreement between the calculation with experiment, the differences that are observed may be due to the fact that the mean reaction rate is determined by considering a PDF which is presumed here; the difference can also be caused by the influence of differential diffusion which is very strong, specially at $X/D = 5$ and $X/D = 10$ because the flow is assumed to be laminar; this assumption shows the limits of the model of turbulence $\kappa - \varepsilon$ which do not consider the laminar mixing layer region close to the nozzle and the transition point after $X/D = 10$.

5 Conclusion

In this work, the simulation of a turbulent diffusion flame CH₄/H₂/N₂ was done, in order to validate the table of delays of the reduced mechanism by the CSP method. This approach is based on the analysis of the important indices of the groups of reactions on the evolution of species and the degree of participation of the elementary reactions. Following the Reynolds-averaged Navier–Stokes simulation scheme, standard $\kappa - \varepsilon$ and MIL are used as turbulence and combustion models, respectively. The algebraic model or the transport equation was used to evaluate the scalar dissipation rate that appears in the equation of the variance of mixture fraction. The numerical and experimental results agree with both models (algebraic, transport equation) for the prediction of reactants (CH₄, O₂, and H₂). The transport equation gave results closer to the experimental than the algebraic model for predicting products (temperature, CO₂ and H₂O). In general, the calculated delays table from the reduced mechanism [27] produces the same result as that using GRI 3.0 [2] and Pope [28].

Nomenclature

Latin Letters

- g = global rate of reaction ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{S}^{-1}$)
 y = mass fraction vector of species

- J = Jacobian matrix of g
 M = number of fast group
 \tilde{u} = mean velocity (m/s)
 a_i = basic vectors
 a_r = fast basic vectors
 a_s = slow basic vectors
 C_p = heat capacity (J/kg/K)
 C_r = reduced stoichiometric coefficients
 S_i = stoichiometric vectors
 \tilde{Y}_k = mean mass fraction of the species k
 T_a = air inlet temperature (K)
 T_f = fuel inlet temperature (K)
 V_a = air velocity (m/s)
 V_f = fuel velocity (m/s)
 b^r = inverse of a_r
 b^s = inverse of a_s
 R^i = elementary reaction rate ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{S}^{-1}$)
 I_r^i = important of r th reaction on the evolution of the i th reactant
 K_j^i = important of j th group of reaction on the evolution of the i th reactant
 D_c = diameter of coflow (mm)
 $i.d$ = inner diameter (mm)
 $Q(M)$ = CSP–pointer
 ϕ = instantaneous mixture fraction
 $\bar{\phi}$ = Favre average mixture fraction
 $\tilde{\phi}''$ = variance of the Favre average mixture fraction

Greek Letters

- ε = dissipation rate of energy ($\text{m}^2 \text{s}^3$)
 κ = turbulent kinetic energy ($\text{m}^2 \text{s}^2$)
 μ = molecular viscosity
 μ_t = turbulent viscosity (m^2/s)
 $\bar{\rho}$ = density (kg m^3)
 σ_r = turbulent Schmidt number
 τ_T = turbulent integral time scale (s)
 τ = exchange time scale involved in the IEM closure
 $\tilde{\omega}_k$ = chemical production/destruction rate of Y (1/s)
 $\tilde{\omega}_Y$ = chemical production/destruction rate of oxygen (1/s)

Subscripts and Superscripts

- Equ = related to the equilibrium lines
 ig = related to ignition
 $Jump$ = related to inflammation
 mix = related to the pure mixing line
 st = related to stoichiometry

References

- [1] Glaude, P. A., Warth, V., Fournet, R., Battin-Leclerc, F., Scacchi, G., and Côme, G. M., 1998, "Modeling of the Oxidation of N-Octane and N-Decane Using An Automatic Generation of Mechanisms," *Int. J. Chem. Kinet.*, **30**(12), pp. 949–959.
- [2] Smith, G. P., Golden, D. M., Frenklach, M., Moriarty, N. W., Eiteneer, B., Goldenberg, M., Bowman, C. T., Hanson, R. K., Song, S., Gardinaer, W. C., and Lissianski, V. V., 1998, GRI-Mech version 3.0, <http://www.combustion.berkeley.edu/gri-mech/version30/text30.html>
- [3] Turányi, T., 1997, "Applications of Sensitivity Analysis to Combustion Chemistry," *Reliability Eng. Syst. Saf.*, **57**, pp. 41–48.
- [4] Griffiths, J. F., 1995, "Reduced Kinetic Models and Their Application to Practical Combustion Systems," *Prog. Energy Combust. Sci.*, **21**, pp. 25–107.
- [5] Vajda, S., and Turányi, T., 1986, "Principal Component Analysis for Reducing the Edelson–Fields–Noyes Model of the Belousov–Zhabotinsky Reaction," *J. Phys. Chem.*, **90**, pp. 1664–1670.
- [6] Turányi, T., 1990, "Reduction of Large Reaction Mechanisms," *New. J. Chem.*, **14**, pp. 795–803.
- [7] Turányi, T., 1994, "Parameterization of Reaction Mechanisms Using Orthonormal Polynomials," *Comput. Chem.*, **18**, pp. 45–54.
- [8] Maas, U., and Pope, S. B., 1992, "Simplifying Chemical Kinetics: Intrinsic Low-Dimensional Manifolds in Composition Space," *Combust. Flame*, **88**, pp. 239–264.
- [9] Maas, U., 1998, "Efficient Calculation of Intrinsic Low-Dimensional Manifolds for the Simplification of Chemical Kinetics," *Comput. Visualization Sci.*, **1**(2), pp. 69–81.
- [10] Max, B., 1913, "Eine Theorie Der Photochemischen Reaktionsgeschwindigkeiten," *Z. Phys. Chem.*, **85**, pp. 329–397.
- [11] Chapman, D. L., and Underhill, L. K., 1913, "The Interaction of Chlorine and Hydrogen. The Influence of Mass," *J. Chem. Soc. Trans.*, **103**, pp. 496–508.
- [12] Yu, G., Hadi, F., and Metghalchi, H., 2018, "Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Application in Shock Tube Ignition Delay Time Simulation," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **141**(2), p. 020801.
- [13] Du, L., Yu, G., Wang, Z., and Metghalchi, H., 2019, "The Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Combustion Modeling of N -Pentane/Oxygen/Diluent Mixtures," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **141**(8), p. 082206.
- [14] Yu, G., Metghalchi, H., Askari, O., and Wang, Z., 2018, "Combustion Simulation of Propane/Oxygen (With Nitrogen/Argon) Mixtures Using Rate-Controlled Constrained-Equilibrium," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **141**(2), p. 022204.
- [15] Bishnu, P., Hamiroune, D., and Metghalchi, M., 2001, "Development of Constrained Equilibrium Codes and Their Applications in Nonequilibrium Thermodynamics," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **123**(3), pp. 214–220.
- [16] Hadi, F., and Sheikhi, M., 2016, "A Comparison of Constraint and Constraint Potential Forms of the Rate-Controlled Constraint-Equilibrium Method," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **138**(2), p. 022202.
- [17] Nicolas, G., and Metghalchi, H., 2015, "Comparison Between RCCE and Shock Tube Ignition Delay Times At Low Temperatures," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **137**(6), p. 062203.
- [18] Nicolas, G., and Metghalchi, H., 2016, "Development of the Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Method for Modeling of Ethanol Combustion," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **138**(2), p. 022205.
- [19] Janbozorgi, M., Gao, Y., Metghalchi, M., and Keck, J. C., 2006, "Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Calculations of Ethanol-Oxygen Mixture," ASME Paper No. IMCEC2006-15667.
- [20] Janbozorgi, M., Ugarte, S., Metghalchi, M., and Keck, J. C., 2009, "Combustion Modeling of Mono-Carbon Fuels Using the Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Method," *Combust. Flame*, **156**(10), pp. 1871–1885.
- [21] Beretta, G., Janbozorgi, M., and Metghalchi, H., 2016, "Degree of Disequilibrium Analysis for Automatic Selection of Kinetic Constraints in the Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Method," *Combust. Flame*, **168**, pp. 342–364.
- [22] Yu, G., Zhang, Y., Wang, Z., Bai, Z., and Metghalchi, H., 2019, "The Rate-Controlled Constrained-Equilibrium Combustion Modeling of N-Butane/Oxygen/Diluent Mixtures," *Fuel*, **239**, pp. 786–793.
- [23] Massias, A., Diamantis, D., Mastorakos, E., and Goussis, D. A., 1999, "An Algorithm for the Construction of Global Reduced Mechanisms with CSP Data," *Combust. Flame*, **117**, pp. 685–708.
- [24] Massias, A., Diamantis, D., Mastorakos, E., and Goussis, D. A., 1999, "Global Reduced Mechanisms for Methane and Hydrogen Combustion With Nitric Oxide Formation Constructed With CSP," *Combust. Theory Modell.*, **3**, pp. 233–257.
- [25] Lam, S. H., 1993, "Using CSP to Understand Complex Chemical Kinetics," *Combust. Sci. Tech.*, **89**, pp. 375–404.
- [26] Lam, S. H., and Goussis, D. A., 1994, "The CSP Method for Simplifying Kinetics," *Int. J. Chem. Kinet.*, **26**, pp. 461–486.
- [27] Awakem, D., Obounou, M., and Noume, H. C., 2019, "Application of the Computational Singular Perturbation Method to a Turbulent Diffusion CH₄/H₂/N₂ Flame Using OpenFOAM," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **141**(4), p. 042201.
- [28] Yang, B., and Pope, S. B., 1998, "An Investigation of the Accuracy of Manifold Methods and Splitting Schemes in the Computational Implementation of Combustion Chemistry," *Combust. Flame*, **112**(1–2), pp. 16–32.
- [29] Borghi, R., and Gonzalez, M., 1986, "Applications of Lagrangian Models to Turbulent Combustion," *Combust. Flame*, **63**, pp. 239–250.
- [30] Borghi, R., 1988, "Turbulent Combustion Modeling," *Prog. Energy Combust. Sci.*, **14**, pp. 245–292.
- [31] Obounou, M., Gonzalez, M., and Borghi, R., 1994, "A Lagrangian Model for Predicting Turbulent Diffusion Flames with Chemical Kinetic Effects," Symposium (International) on Combustion, **25**(1), pp. 1107–1113.
- [32] Fallot, L., Gonzalez, M., Elamraoui, R., and Obounou, M., 1997, "Modelling Finite-Rate Chemistry Effects in Nonpremixed Turbulent Combustion: Test on the Bluff-Body Stabilized Flame," *Combust. Flame*, **110**, pp. 298–314.
- [33] Mouangue, R., Obounou, M., Gnenedem, C., and Njomo, D., 2010, "Numerical Simulation of a Lifted Methane Jet Flame in a Vitiated Coflow: Lagrangian Approach With Detail Chemistry," *J. Eng. Appl. Sci.*, **5**(3), pp. 211–220.
- [34] Gomet, L., Robin, V., and Mura, A., 2014, "Lagrangian Modelling of Turbulent Spray Combustion Under Liquid Rocket Engine Conditions," *Acta Astronautica*, **94**, pp. 184–197.
- [35] Sanders, J. P., and Gökalp, I., 1998, "Scalar Dissipation Rate Modelling in Variable Density Turbulent Axisymmetric Jets and Diffusion Flames," *Phys. Fluids*, **10**, pp. 938–948.
- [36] Mantel, T., and Borghi, R., 1994, "A New Model of Premixed Wrinkled Flame Propagation Based on a Scalar Dissipation Equation," *Combust. Flame*, **96**, pp. 443–457.
- [37] Jones, W. P., and Musonge, P., 1988, "Closure of the Reynolds Stress and Scalar Flux Equations," *Phys. Fluids*, **31**, pp. 3589–3604.
- [38] Meier, W., Barlow, R. S., Chen, Y.-L., and Chen, J.-Y., 2000, "Raman/Rayleigh/LIF Measurements in a Turbulent CH₄/H₂/N₂ Jet Diffusion Flame: Experimental Techniques and Turbulence–Chemistry Interaction," *Combust. Flame*, **123**(3), pp. 326–343.
- [39] Schneider, Ch., Dreizler, A., and Janicka, J., 2003, "Flow Field Measurements of Stable and Locally Extinguishing Hydrocarbon-Fuelled Jet Flames," *Combust. Flame*, **135**(1–2), pp. 185–190.
- [40] Noume, H., Bomba, V., and Obounou, M., 2020, "Numerical Investigation of a Turbulent Jet Flame with a Compact Skeletal Mechanisms," *ASME J. Energy Resour. Technol.*, **142**(3), p. 032206.
- [41] Pitsch, Heinz, 2000, "Unsteady Flamelet Modeling of Differential Diffusion in Turbulent Jet Diffusion Flames," *Combust. Flame*, **123**, pp. 358–374.
- [42] Pitsch, H., and Peters, N., 1998, "A Consistent Flamelet Formulation for Non-Premixed Combustion Considering Differential Diffusion Effects," *Combust. Flame*, **114**, pp. 26–40.
- [43] Lindstedt, R. P., and Ozarovsky, H. C., 2005, "Joint Scalar Transported PDF Modeling of Non Piloted Turbulent Diffusion Flames," *Combust. Flame*, **143**, pp. 471–490.
- [44] Ihme, M., Pitsch, H., and Bodony, D., 2009, "Radiation of Noise in Turbulent Non-Premixed Flames," *Proc. Combust. Inst.*, **32**(1), pp. 1545–1553.
- [45] Emami, M. D., and Eshghinejad Fard, A., 2012, "Laminar Flamelet Modeling of a Turbulent CH₄/H₂/N₂ Jet Diffusion Flame Using Artificial Neural Networks," *Appl. Math. Modell.*, **36**(5), pp. 2082–2093.
- [46] Fairweather, M., and Woolley, R. M., 2004, "First-order Conditional Moment Closure Modeling of Turbulent, Nonpremixed Methane Flames," *Combust. Flame*, **138**, pp. 3–19.
- [47] Wang, H., and Pope, S. B., 2011, "Large Eddy Simulation/Probability Density Function Modeling of a Turbulent CH₄/H₂/N₂ Jet Flame," *Proc. Combust. Inst.*, **33**(1), pp. 1319–1330.
- [48] EDF R and D, "Code Saturne 3.0 Theory and Programmer's Guide," Technical Report. <http://www.code-saturne.org>
- [49] Alim, M. A., and Malalasekera, W., 2005, "Transport and Chemical Kinetics of H₂/N₂ Jet Flame: A Flamelet Modelling Approach With Nox Prediction," *J. Naval Architecture Mar. Eng.*, **2**(1), pp. 33–40.
- [50] McGuirk, J. J., and Rodi, W., 1979, "The Calculation of Three Dimensional Turbulent Free Jets," F. Durst, B. E. Launder, F. W. Schmidt, and J. H. Whitelaw, eds, *Turbulent Shear Flows I*, Springer, Berlin, Heidelberg, pp. 71–83.
- [51] Villermaux, J., 1986, *Encyclopedia of Fluid Mechanics*, Gulf Publishing Co., West Orange, NJ, p. 707.