

Impact de la composition du syngas sur la vitesse de flamme et la stabilité du front de flamme

par

Denis LAPALME

THÈSE PRÉSENTÉE À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
COMME EXIGENCE PARTIELLE À L'OBTENTION DU
DOCTORAT EN GÉNIE
Ph. D.

MONTRÉAL, LE 2 JUIN 2017

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC



Denis Lapalme, 2017



Cette licence [Creative Commons](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/) signifie qu'il est permis de diffuser, d'imprimer ou de sauvegarder sur un autre support une partie ou la totalité de cette œuvre à condition de mentionner l'auteur, que ces utilisations soient faites à des fins non commerciales et que le contenu de l'œuvre n'ait pas été modifié.

PRÉSENTATION DU JURY

CETTE THÈSE A ÉTÉ ÉVALUÉE

PAR UN JURY COMPOSÉ DE :

M. Patrice Seers, directeur de thèse
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. Alan Carter, président du jury
Département du génie de la construction à l'École de technologie supérieure

M. François Garnier, membre du jury
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. Romain Lemaire, membre du jury
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. Étienne Robert, examinateur externe indépendant
Département de génie mécanique à Polytechnique Montréal

ELLE A FAIT L'OBJET D'UNE SOUTENANCE DEVANT JURY ET PUBLIC

LE 11 MAI 2017

À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

REMERCIEMENTS

Je désire dans un premier temps remercier mon directeur de thèse, M. Patrice Seers. Ses encouragements dans les bons et dans les mauvais moments, ses conseils et son appui continu m'ont grandement aidé à persévérer tout au long de mon doctorat. Je le remercie également pour ses efforts qui m'ont permis de faire deux stages en France, me donnant l'opportunité de visiter l'Europe et de me développer professionnellement et personnellement.

Parlant de stage, je remercie Mme Christine Mounaïm-Rousselle et M. Fabien Halter de m'avoir reçu pendant un mois au laboratoire PRISME de l'université d'Orléans. Je remercie également M. Romain Lemaire pour son accueil au cours de mon stage de trois mois à l'École de Mines de Douai. Nos discussions, autant à Douai qu'à Montréal autour d'un Boston à l'érable ont toujours été fort agréables. Je remercie également les doctorants qui m'ont à chaque fois reçu chaleureusement.

Merci aux compagnies et organismes qui m'ont accordé des bourses: Rolls-Royce Canada, le Conseil de recherche en sciences naturelles du Canada (CRSNG), le fonds de recherche du Québec – Nature et Technologie (FRQNT), l'École de technologie supérieure et Hydro-Québec. Leur soutien financier m'a permis de travailler à temps plein sur ma thèse. Merci aussi à Patrice pour son aide financière au moment creux entre mes bourses de maîtrise et de doctorat.

Je tiens à souligner l'apport de plusieurs membres du département de Génie mécanique pour leur aide inestimable: Alain Grimard, Michel Drouin, Serge Plamondon et Simon Laflamme. Je vous remercie pour toute l'aide technique que vous avez pu me donner tout au long de mon doctorat.

Merci à tous les collègues des cycles supérieurs, Abdel, Annabelle, Arnaud, Cyprien, Damien, Emmanuel, Étienne, Hafiz, Jonathan, Jorn, Mary et Marie, Mohamed, Olivier, les

VI

deux Pascal, Salha, Sitraka, Thomas, Trung ainsi que Viridiana, pour toutes les discussions, pour tous les repas du midi que nous avons partagés et pour les activités que nous avons fait ensemble pour nous changer les idées.

Je tiens finalement à remercier ma mère, mon père et mon frère de m'avoir soutenu et encouragé à chaque nouvelle étape de mes études. Mes remerciements ultimes vont à ma blonde Delphine. Mener nos thèses respectives à bon port en même temps aura été toute une aventure, surtout dans le *rush* final, mais nous avons toujours pu compter l'un sur l'autre pour s'écouter, se remotiver et se redonner confiance.

IMPACT DE LA COMPOSITION DU SYNGAS SUR LA VITESSE DE FLAMME ET LA STABILITÉ DU FRONT DE FLAMME

Denis LAPALME

RÉSUMÉ

L'adoption de la gazéification intégrée à cycles combinés est envisagée par l'industrie de la production d'électricité afin de remplacer les actuelles technologies utilisées dans les centrales au charbon. Cette technologie brûle, dans une turbine à gaz, des carburants synthétiques (syngas) produits par la gazéification de biomasse ou de charbon afin de produire de l'électricité. Idéalement, le syngas n'est composé que de H_2 et de CO , mais du CO_2 et du CH_4 sont aussi fréquemment produits lors de la gazéification. L'objectif de cette thèse est de caractériser l'impact de la variation de la composition du syngas sur deux paramètres clés lors de la conception des turbines à gaz: la vitesse laminaire de flamme et l'apparition des instabilités cellulaires. Pour ce faire, une campagne de mesures expérimentales a été réalisée pour ces deux paramètres. Concernant la vitesse laminaire de flamme, il est montré que l'augmentation du ratio H_2/CO augmente la vitesse, tandis que l'ajout de CO_2 et de CH_4 la décroît. De plus, la richesse où la vitesse atteint son maximum diminue lors d'une augmentation du ratio H_2/CO ou d'un ajout de CH_4 à cause de la vitesse intrinsèque de chacun de ces carburants. L'ajout de CO_2 déplace aussi le maximum de vitesse vers des mélanges moins riches à cause de la réduction de la température adiabatique de flamme. Les comparaisons entre les résultats expérimentaux et numériques montrent qu'une version modifiée de la cinétique GRI-Mech 3.0 permet de mieux prédire la vitesse des syngas contenant entre 1 et 40% de CH_4 . Une corrélation est proposée pour calculer la vitesse en fonction de la composition du carburant, de la richesse et de la température initiale. Les propriétés des syngas entraînent toutefois l'apparition d'instabilités cellulaires qui provoquent une autoaccélération du front de flamme. Comme l'apparition des cellules est influencée par le nombre de Lewis du carburant, cette thèse présente une méthodologie permettant de le calculer pour les syngas. Cette méthode est validée grâce à des comparaisons avec des résultats expérimentaux pour des carburants H_2/CO , H_2/CH_4 , $H_2/CO/CO_2$ et $H_2/CO/CH_4$. À la suite du choix de la méthodologie du calcul du nombre de Lewis, l'étude sur les instabilités porte sur l'influence de l'ajout de CO_2 et de CH_4 au syngas. L'ajout de CO_2 ne change pas le moment où les cellules apparaissent puisque la diminution du nombre de Lewis est équilibrée par la hausse de l'épaisseur de flamme. Un ajout de CH_4 retarde cependant l'apparition des cellules à cause d'une augmentation de l'épaisseur de flamme tandis que le nombre de Lewis reste stable. Il est aussi observé que l'autoaccélération de la flamme ne mène pas à l'autoturbulence. Cette thèse montre que le coefficient d'autoaccélération peut être utilisé comme critère permettant de distinguer la nature du mécanisme ayant déstabilisé la flamme. Finalement, une corrélation est proposée afin de prédire le moment où les cellules apparaissent, et ce en tenant compte des instabilités hydrodynamique et thermodiffusive.

Mots-clés: syngas, vitesse laminaire de flamme, nombre de Lewis effectif, instabilités cellulaires

IMPACT OF THE COMPOSITION OF SYNGAS ON THE FLAME SPEED AND STABILITY OF THE FLAME FRONT

Denis LAPALME

ABSTRACT

The integrated gasification combined cycle (IGCC) technology is considered by many electric power generation companies as a possible replacement for the current coal power plant technologies. The IGCC uses the synthetic gas (syngas) released during the gasification of coal or biomass to produce electricity through a gas turbine. Syngas is ideally a mixture of H_2 and CO , but also often contains CO_2 and CH_4 . Therefore, the objective of this thesis is to characterize the impact of the composition of the syngas on the laminar flame speed of the flame front and on the onset of cellular instabilities. To achieve this goal, experimental measurements were performed. It was found that laminar flame speed increases with increasing H_2/CO ratio, while CO_2 dilution or CH_4 addition decreased it. The location of the maximum flame speed shifts to leaner mixtures with increasing H_2/CO ratio or addition of CH_4 because the flame speed of H_2 and CH_4 peak in leaner mixtures. The location of the maximum flame speed is also shifted towards leaner mixtures with the addition of CO_2 due to the reduction of the adiabatic flame temperature. Comparison between experimental and numerical results shows a better agreement using a modified GRI-Mech 3.0, especially for $H_2/CO/CH_4$ mixtures containing between 1% and 40% CH_4 . A correlation, based on the experimental results, is proposed to calculate the laminar flame speed over a wide range of equivalence ratios, inlet temperatures, and fuel content. However, the onset of cellular instabilities causes the self-acceleration of the flame, which hence becomes faster than the laminar flame speed. One of the main parameters controlling the onset of cellular instabilities is the Lewis number. This thesis presents a three-step methodology for the calculation of the Lewis number of syngas. The methodology is validated by comparison with experimental results for H_2/CO , H_2/CH_4 , $H_2/CO/CH_4$ and $H_2/CO/CO_2$ fuels. Following the choice of the methodology for the calculation of the Lewis number, a study is performed to investigate the impact of the addition of CO_2 or CH_4 on the onset of instability in syngas. The addition of CO_2 in syngas has no impact on the onset of cellularity since the promotion of instability through a decrease of Le is counterbalanced by the increase of the flame thickness. The addition of CH_4 , however, slows the onset, as the flame thickness is increased while Le remains stable. It was observed that the apparition of cells causes the self-acceleration of the flame, but does not lead to self-turbilization. This thesis shows that the self-acceleration coefficient of a flame can be used as a criterion for the identification of the nature of the instability. Finally, a correlation is proposed in order to predict the onset of cellular instabilities based on the hydrodynamic and thermodiffusive mechanisms.

Keywords: syngas, laminar flame speed, effective Lewis number, cellular instabilities

TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 Revue de la littérature.....	3
1.1 Présentation des syngas.....	3
1.1.1 Historique des syngas	3
1.1.2 Moyens de fabrication et composition.....	6
1.1.3 Utilisation des syngas	9
1.2 Vitesse laminaire de flamme.....	11
1.2.1 Effet du ratio H_2/CO	11
1.2.2 Effet de la dilution au N_2 ou au CO_2	14
1.2.3 Effet de la température initiale.....	16
1.2.4 Effet de l'addition de CH_4	17
1.3 Les instabilités du front de flamme.....	18
1.3.1 Notions fondamentales.....	20
1.3.2 Observations expérimentales	25
1.3.3 Les conséquences de la cellularité	32
1.4 Problématique	33
1.5 Objectifs de recherche.....	36
CHAPITRE 2 Montages et méthodologies	39
2.1 Description des montages expérimentaux	39
2.1.1 Brûleur Bunsen	40
2.1.2 Bombe à combustion.....	44
2.2 Incertitude des mesures expérimentales.....	50
2.2.1 Incertitude individuelle d'une variable ou d'un instrument.....	51
2.2.2 Propagation des incertitudes individuelles.....	51
2.3 Simulations numériques.....	52
2.4 Synthèse du chapitre	54
CHAPITRE 3 Vitesse de flamme	55
3.1 Incertitudes expérimentales	55
3.2 Résultats expérimentaux	56
3.2.1 Carburants testés	56
3.2.2 Influence du ratio H_2/CO	57
3.2.3 Influence du CH_4	59
3.2.4 Influence du CO_2	62
3.2.5 Effets thermiques et cinétiques du CO_2	64
3.2.6 Effet de la température initiale.....	68
3.3 Corrélation pour la vitesse de flamme	72
3.4 Conclusion	75

CHAPITRE 4	Nombre de Lewis	77
4.1	Procédure du calcul empirique du nombre de Lewis.....	78
4.1.1	Diffusivité massique	79
4.1.2	Calcul du Le_i	81
4.1.3	Formules de mélange des Le_i pour les carburants à plusieurs combustibles	82
4.1.4	Combinaison du carburant et de l'oxydant	84
4.1.5	Résumé de la procédure de calcul du Le_{eff}	84
4.2	Procédure expérimentale.....	85
4.2.1	Extraction expérimentale du Le	86
4.2.2	Incertitude expérimentale.....	88
4.3	Évaluation des méthodes d'extraction	89
4.3.1	Mélanges H_2 -air	90
4.3.2	Mélanges CH_4 -air.....	91
4.3.3	Mélanges CO -air.....	92
4.4	Résultats et discussion	94
4.4.1	Flammes H_2/CH_4	94
4.4.2	Flammes H_2/CO	99
4.4.3	Flammes de $H_2/CO/CH_4$ et de $H_2/CO/CO_2$	102
4.5	Conclusion	104
CHAPITRE 5	Cellularité	107
5.1	Mécanismes causant les instabilités cellulaires	108
5.2	Apparition de la cellularité.....	110
5.2.1	Incertitudes sur R_{cr}	111
5.2.2	Influence de l'ajout des additifs.....	112
5.2.3	Influence des propriétés de la flamme	117
5.3	Autoaccélération	118
5.4	Nombre de Peclet et prédiction de l'apparition des cellules.....	123
5.5	Conclusion	128
DISCUSSION ET CONCLUSION		131
RECOMMANDATIONS		139
ANNEXE I	Calcul de l'incertitude de la richesse.....	141
ANNEXE II	Calcul des incertitudes de la vitesse de flamme du brûleur Bunsen.....	145
ANNEXE III	Calcul des incertitudes dans la bombe à combustion	147
ANNEXE IV	Incertitude des flammes du CHAPITRE 3	153
ANNEXE V	Incertitude de flammes sélectionnées du CHAPITRE 4	159
ANNEXE VI	Incertitude des flammes du CHAPITRE 5	161

ANNEXE VII	Prédiction du Le_{eff} dans des flammes H_2/CO_2	163
ANNEXE VIII	Équations pour le calcul du Pe_{cr} théorique.....	165
APPENDICES	Effet de l'étirement de la flamme sur R_{cr}	167
LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....		169

LISTE DES TABLEAUX

	Page
Tableau 3.1 Composition des carburants pour l'étude sur la vitesse de flamme.....	57
Tableau 3.2 Réactions modifiées par Vu et al. (2011b). Unités en mol-cm-s-cal-K.....	61
Tableau 3.3 Plage de validité de la corrélation	73
Tableau 3.4 Composition des trois carburants utilisés.....	74
Tableau 4.1 Formulations pour le calcul du nombre de Lewis effectif	83
Tableau 4.2 Méthode d'extraction du Le à employer pour les	93
Tableau 4.3 Méthodologie du calcul empirique du nombre de Lewis.....	102
Tableau 4.4 Composition des carburants à trois combustibles	103
Tableau 5.1 Matrice de tests M1	112
Tableau 5.2 Matrice de tests M2.....	117
Tableau 5.3 Matrice de test M3	120
Tableau 5.4 Matrice des tests effectués à Polytech'Orléans.....	128

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1 Comparaison des émissions de SO ₂ , NO _x et PM entre les technologies GICC et les centrales au charbon conventionnelles (données provenant du National Energy Technology Laboratory (2015a; 2015b)).....	5
Figure 1.2 Schématisation du procédé de gazéification. Adaptée de Richards et Castleton (2010)	7
Figure 1.3 Distribution de chaque combustible dans des syngas commerciaux. En bleu : syngas issus de la gazéification du charbon. En rouge : syngas issus de la gazéification de la biomasse. Tiré des données de Couto et al. (2013); Göransson et al. (2011); Molière (2002); Sun et al. (2013)	8
Figure 1.4 Vitesse laminaire de flamme des carburants H ₂ /CO en fonction de la richesse. Adaptée de (Dong et al., 2009)	12
Figure 1.5 Comparaison entre une flamme cellulaire (A) et une flamme stable (B).....	19
Figure 1.6 Schématisation du mécanisme d'instabilité thermodiffusif (adaptée de Law (2006) et Williams (1985)).....	22
Figure 1.7 Schématisation du mécanisme d'instabilité hydrodynamique (adaptée de Law (2006)).....	24
Figure 2.1 Schéma du montage pour l'expérience sur la vitesse de flamme	40
Figure 2.2 Images de la chimiluminescence OH* d'une flamme 50/50 H ₂ /CO à $\phi = 1,6$. A: image complète; B: polynôme (rouge continu) représentant la bordure du maximum d'intensité (bleu pointillé)	42
Figure 2.3 Vitesses de flamme (50/50 H ₂ /CO) mesurées dans cette étude comparées à certains résultats publiés dans la littérature.....	44
Figure 2.4 Schéma du montage expérimental.....	46
Figure 2.5 Comparaison entre les vitesses laminaires de flamme expérimentales et numériques. A: flamme de H ₂ /CH ₄ ; B: flamme de syngas (le nombre à côté de S représentant le ratio H ₂ /CO).....	49
Figure 2.6 Longueurs de Markstein d'un ensemble de carburants	50

Figure 3.1 Influence du ratio H_2/CO sur S_u . Les symboles représentent les résultats expérimentaux. Les lignes pleines : GRI-Mech 3.0; les lignes pointillées : cinétique de Davis	58
Figure 3.2 Impact sur S_u d'un ajout de CH_4 dans du syngas. Les symboles représentent les résultats expérimentaux. Lignes pleines : GRI-Mech 3.0; lignes pointillées : USC Mech II	59
Figure 3.3 Coefficients de sensibilité normalisée des constantes pré-exponentielles de S_u pour des carburants équimolaires H_2/CO à $\varphi = 1,4$ comportant différentes concentrations de CH_4	61
Figure 3.4 Comparaison entre la cinétique GRI-Mech 3.0 originale (ligne pleine) et la version modifiée selon Vu et al. (2011b) (ligne pointillée). Les symboles représentent les résultats expérimentaux	63
Figure 3.5 Influence de la concentration de CO_2 sur S_u . Comparaison entre les mesures de la présente étude (symboles vides) et celles de Prathap et al. (2012) (symboles pleins) (lignes pleines : GRI-Mech 3.0; lignes pointillées : Davis)	63
Figure 3.6 Évolution linéaire de S_u lors d'un ajout de CO_2 . Symboles : résultats expérimentaux; lignes pleines : GRI-Mech 3.0; lignes pointillées : Davis	65
Figure 3.7 Contribution de l'effet thermique sur la réduction de la vitesse de flamme à différentes proportions de CO_2	66
Figure 3.8 Diffusivité thermique et température adiabatique de flamme en fonction de la richesse	67
Figure 3.9 Fraction molaire totale de diluants ($CO_2 + N_2$) en fonction de la richesse	68
Figure 3.10 Effet de la température initiale sur la vitesse de flamme du carburant S50. (symboles vides: ce travail; symboles pleins: résultats à 400 K de Natarajan et al. (2005) et Singh et al. (2012). Les lignes pleines : GRI-Mech 3.0; les lignes pointillées : GRI-Mech modifié)	69
Figure 3.11 Vitesse de flamme du carburant S50 (losanges et ligne pointillée) et S50C20 (carrés et ligne pleine) à 350 K et 450 K. Les lignes : GRI-Mech modifié	70
Figure 3.12 Vitesse laminaire de flamme des carburants S50M5 (losanges et lignes pleines) et S50M40 (carrées et lignes pointillées) à 350 K (symboles vides) et 450 K (symboles pleins). Les lignes : GRI-Mech modifié	71
Figure 3.13 Comparaison entre la vitesse de flamme déterminée par la corrélation et la vitesse expérimentale	74

Figure 3.14 Validation de la robustesse de la corrélation. Symboles pleins: corrélation Symboles vides: expérimental, lignes pointillées : GRI-Mech modifié.....	74
Figure 4.1 Comparaison entre les Le obtenus en utilisant la diffusion moyennée et la diffusion binaire	81
Figure 4.2 Résumé de la procédure du calcul empirique du nombre de Lewis	85
Figure 4.3 Nombre de Lewis expérimental pour les mélanges H_2 -air, avec les limites théoriques en mélanges pauvres et riches. A : Résultats obtenus en considérant les deux définitions de l'épaisseur de flamme. B : Résultats proches des limites théoriques.....	90
Figure 4.4 Le expérimental pour les mélanges CH_4 -air, avec les limites théoriques en mélanges pauvres et riches	92
Figure 4.5 Le expérimental pour les mélanges CO -air, avec les limites théoriques en mélanges pauvres et riches.....	94
Figure 4.6 Longueurs de Markstein des carburants H_2/CH_4	95
Figure 4.7 Comparaison des nombres de Lewis expérimentaux et empiriques des carburants H_2/CH_4 . ϕ augmente de haut en bas. La colonne de gauche permet de comparer les règles de mélange tandis que la colonne de droite permet d'évaluer si la combinaison f/O_2 est nécessaire	97
Figure 4.8 Comparaison des nombres de Lewis expérimentaux et empiriques des carburants H_2/CO	101
Figure 4.9 Comparaison entre les Le expérimentaux et les Le_{eff} calculés avec la méthode décrite au Tableau 4.3. A : tous les carburants testés, y compris ceux du Tableau 4.4, B : carburants H_2/CO seulement; C : carburants H_2/CH_4 seulement.....	104
Figure 5.1 Comparaison entre les impacts d'un ajout de CO_2 (gauche) et de CH_4 (droite) sur le comportement cellulaire d'une flamme H_2/CO	109
Figure 5.2 Impact d'un ajout de CO_2 et de CH_4 sur R_{cr} et sur les principales propriétés gouvernant les instabilités	113
Figure 5.3 Variation adimensionnalisée de R_{cr} et des principales propriétés gouvernant les instabilités. En bleu : ajout de CO_2 ; en rouge : ajout de CH_4	114
Figure 5.4 Évolution de l'apparence du front de flamme de syngas à diverses concentrations de CH_4	115

Figure 5.5 Évolution de l'apparence du front de flamme de syngas à diverses concentrations de CO ₂	116
Figure 5.6 Influence du Le (gauche) et de σ (droite) sur le R_{cr} de flammes de syngas à diverses épaisseurs de flamme	118
Figure 5.7 Relation entre R_{cr} et β	122
Figure 5.8 Vitesse à R_{cr} en fonction de β	122
Figure 5.9 Impact de l'ajout de CH ₄ et de CO ₂ sur les Pe_{cr} théorique et expérimental	125
Figure 5.10 Comparaison entre les Pe_{cr} théorique et expérimental de toutes les flammes testées	126
Figure 5.11 Pe_{cr} calculé avec la corrélation et comparé aux résultats expérimentaux A) des matrices de tests M1, M2 et M3; B) de mesures effectuées à Polytech'Orléans et de Okafor et al. (2016)	127

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

F/A	ratio massique d'air sur carburant
FES	Flamme en expansion sphérique
GICC	Gazéification intégrée à un cycle combiné
MNL	Méthode non linéaire
PM	Particules (Particulate Matter)
TdP	Taux de production

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

Espèces chimiques

CH ₄	Méthane
C ₂ H ₂	Acétylène
C ₃ H ₈	Propane
C ₄ H ₁₀	Butane
CO	Monoxyde de carbone
CO ₂	Dioxyde de carbone
H ₂	Hydrogène
H ₂ O	Eau
He	Hélium
N ₂	Azote
NO _x	Oxyde d'azote
O ₂	Oxygène
SO _x	Oxyde de soufre

Unités de mesure

cal	calorie (unité d'énergie)
cm	centimètre (unité de longueur)
J	Joule (unité d'énergie)
K	kelvin (unité de température)
kg	kilogramme (unité de masse)
kg m ⁻³	kilogramme par mètre cube (unité de concentration)
L	litre (unité de volume)
L min ⁻¹	litre par minute (unité de débit)
m	mètre (unité de longueur)
m s ⁻¹	mètre par seconde (unité de vitesse)
m ²	mètre carré (unité d'aire)

$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	mètre carré par seconde (unité de diffusivité)
$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$	mètre cube par seconde (unité de débit)
min	minute
mm	millimètre (unité de longueur)
mol	mole (unité de quantité de matière)
MPa	mégapascal (unité de pression)
Pa	Pascal (unité de pression)
px	pixel (unité de définition d'image)
s	seconde (unité de temps)
W	Watt (unité de puissance)

Symboles

Lettres grecques:

α	Diffusivité thermique [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]
$\bar{\alpha}$	Facteur représentant le ratio d'expansion thermique
β	Coefficient d'autoaccélération
κ	Taux d'étirement [s^{-1}]
ρ_b	Masse volumique des gaz brûlés [kg m^{-3}]
ρ_u	Masse volumique des gaz frais [kg m^{-3}]
σ	Ratio d'expansion thermique
Σ	Taux de croissance d'une perturbation
φ	Richesse
$\varphi_{Su=\max}$	Richesse où la vitesse est maximale
Φ	Ratio entre les masses du réactif excédent et du réactif déficient
ω	Facteur représentant l'effet hydrodynamique sur les instabilités
Ω	Facteur représentant l'effet du transport sur les instabilités
χ^i	Fraction molaire de l'espèce i dans le mélange de carburant

Lettres latines:

A	Aire de la flamme (m^2)
A_l	Facteur de la force du mélange
B	Taux de décroissance de S_u depuis son maximum
B_i	Incertitude systématique individuelle
B_{xi}	Incertitude systématique de la variable x
C_p	Capacité thermique massique ($\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$)
d	Excès fractal
D	Dimension fractale
D_{ij}	Coefficient de diffusion binaire ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)
$D_{i,\text{moy}}$	Coefficient de diffusion massique moyenné ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)
$(dT/dx)_{\text{max}}$	Gradient maximal de température (K m^{-1})
E_a	Énergie d'activation (J mol^{-1})
I_A	Incertitude sur l'aire de la flamme
I_{AP}	Incertitude sur l'aire de la flamme liée à la détection de sa position
I_{dt}	Incertitude sur la fréquence d'acquisition
I_{dR}	Incertitude sur le taux de déplacement du rayon
I_{dRS}	Incertitude sur le taux de déplacement du rayon liée au seuil
I_G	Incertitude sur le grandissement
I_{Lb}	Incertitude sur la longueur de Markstein
I_{Le}	Incertitude sur le nombre de Lewis
I_Q	Incertitude sur le débit
I_R	Incertitude sur le rayon
I_S	Incertitude sur le seuil
I_{Sb}	Incertitude sur la vitesse laminaire des gaz brûlés
I_{Su}	Incertitude sur la vitesse laminaire des gaz frais
I_x	Incertitude de la variable x
k	Conductivité thermique ($\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$)
Ka	Nombre de Karlovitz
L_b	Longueur de Markstein dans les gaz brûlés (m)

L_u	Longueur de Markstein dans les gaz frais (m)
l_{f_G}	Épaisseur de flamme (méthode du gradient) (m)
l_{f_K}	Épaisseur de flamme (méthode cinétique) (m)
Le	Nombre de Lewis
Le_{eff}	Nombre de Lewis effectif
Le_{f/O_2}	Combinaison des Le de l'oxydant et du carburant
Le_{fuel}	Nombre de Lewis du carburant
Le_i	Nombre de Lewis individuel de chaque espèce i (avec un combustible i ou le O_2 comme réactif limitant)
$Le_{i,\alpha}$	Le_i avec diffusion thermique vers tout le mélange air/carburants
$Le_{i,\phi}$	Le_i avec diffusion thermique vers l'air, en utilisant une quantité permettant de conserver du ϕ initial du mélange
Le_{i,ϕ_i}	Le_i avec diffusion thermique vers l'air, en utilisant tout l'air disponible
Le_D	Formulation of Le_i basée sur la diffusion
Le_H	Formulation of Le_i basée sur le dégagement de chaleur
Le_V	Formulation of Le_i basée sur le volume
Le_{O_2}	Nombre de Lewis de l'oxydant
Le_{BM}	Le expérimental extrait par la méthode de Bechtold et Matalon (2001)
Le_{Chen}	Le expérimental extrait par la méthode de Chen, Burke et Ju (2009)
Le_{Law}	Le expérimental extrait par la méthode de Law et Sung (2000)
$\dot{m}$	Débit massique ($kg\ s^{-1}$)
n	Nombre d'onde
N	Nombre de valeur dans un échantillon
P	Pression (Pa)
Pe	Nombre de Peclet
Pe_{cr}	Nombre de Peclet critique
Pr	Nombre de Prandtl
q_i	Dégagement de chaleur normalisé
Q	Débit de gaz ($m^3\ s^{-1}$)
Q_i	Chaleur de réaction ($J\ kg^{-1}$)

$Q_{\#}$	Facteur prenant en compte l'effet de n et σ sur la stabilité, avec $\# = 1, 2$ ou 3
R	Rayon de la flamme (m)
R_{cr}	Rayon critique (mm)
R^0	Constante universelle des gaz ($\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$)
R'	Ratio H_2/CO normalisé
R_e	Constante spécifique du gaz e
RR	Vitesse de réaction
S_b	Vitesse laminaire de flamme locale des gaz brûlés (m s^{-1})
S_b^0	Vitesse laminaire de flamme des gaz brûlés sans étirement (m s^{-1})
S_u	Vitesse laminaire de flamme locale des frais (m s^{-1})
S_u^0	Vitesse laminaire de flamme des gaz frais sans étirement (m s^{-1})
$S_{u,max}$	Vitesse maximale de la flamme en fonction de φ (m s^{-1})
S_{xi}	Incertitude aléatoire de la variable x
t	Temps (s)
T	Température (K)
T_{ad}	Température adiabatique de flamme (K)
T_u	Température des gaz frais (K)
X_i	Une valeur dans un échantillon
X_m	Moyenne des valeurs d'un échantillon
Y_i	Fraction massique de l'espèce i dans le mélange de carburant
$Y_{i,mix}$	Fraction massique de l'espèce i dans le mélange air/carburant
Ze	Nombre de Zel'dovich

INTRODUCTION

La consommation d'énergie a augmenté de plus de 3300 millions de tonnes d'équivalent pétrole entre 2000 et 2012 (International Energy Agency, 2017). Malgré tous les discours sur les énergies renouvelables, le charbon est la source d'énergie qui a connu la plus forte croissance, fournissant 46% de la demande additionnelle en énergie primaire entre 2000 et 2012 (International Energy Agency, 2017). En 2010, près de 40% de l'électricité mondiale était produite avec du charbon (U.S. Energy Information Administration, 2016, p. 10). Beaucoup d'efforts sont présentement déployés afin de trouver des nouvelles technologies permettant de réduire l'impact environnemental ou permettant de remplacer le charbon par la biomasse. L'une de ces technologies est la gazéification intégrée à un cycle combiné. Les centrales reposant sur cette technologie utilisent des carburants synthétiques (syngas) produits par la gazéification de biomasse ou de charbon afin de produire de l'énergie.

Idéalement, le syngas est un mélange composé exclusivement d'hydrogène (H_2) et de monoxyde de carbone (CO). Dans la pratique, la gazéification est un processus complexe qui aboutit à la formation de coproduits gazeux, particulièrement du dioxyde de carbone (CO_2) et du méthane (CH_4). La composition finale du syngas varie grandement en fonction de la nature et de l'origine de la matière première, du processus de gazéification et des traitements pré et post-gazéification (Giles, Som et Aggarwal, 2006; Richards et Castleton, 2010). Cette variation est une problématique majeure puisque le carburant influence les propriétés de combustion sur lesquelles repose la conception de la chambre à combustion. La vitesse laminaire de flamme par exemple est utilisée pour dicter la taille des injecteurs. Si la flamme est plus rapide que le débit massique de carburant, elle se propagera vers l'amont du jet de carburant, provoquant un dangereux retour de flamme dans l'injecteur. Au contraire, une flamme ayant une vitesse laminaire trop faible par rapport au débit de carburant ou à la vitesse de l'écoulement ambiant sera entraînée loin de l'injecteur et de la source de carburant, ce qui peut causer ultimement l'extinction de la flamme. La vitesse laminaire de flamme est une propriété importante qui sert aussi à déterminer la vitesse de la flamme dans les écoulements turbulents ou encore dans les modèles de combustion utilisés en simulation.

numérique. Finalement, les chambres de combustion sont susceptibles à l'apparition d'instabilités de combustion qui dépendent des propriétés du mélange. Ces instabilités sont responsables de combustions anormales et elles ne sont donc pas désirées car elles peuvent endommager la chambre de combustion, par exemple en entrant en résonance avec les fréquences naturelles de la chambre ou en causant de la détonation. Il est donc important de connaître a priori les propriétés reliées à la combustion du syngas que l'on désire utiliser afin de maximiser l'efficacité de la combustion.

Le premier chapitre de cette thèse offre tout d'abord une présentation des syngas. Il présente par la suite une revue de littérature détaillée des plus récents travaux de recherche visant à comprendre l'effet de la composition du syngas sur des propriétés importantes de la combustion, soit la vitesse laminaire et la stabilité du front de flamme. Cette revue de littérature identifie une problématique qui mène à la formulation de l'objectif et des sous-objectifs du présent travail.

Le deuxième chapitre présente les montages expérimentaux de même que les méthodes d'acquisition et de traitement des données. Ce chapitre introduit ensuite les méthodes de calcul des incertitudes expérimentales.

Les troisième, quatrième et cinquième chapitres présentent et analysent les résultats de façon à répondre aux sous-objectifs de la recherche. Chaque chapitre présente le détail des incertitudes expérimentales.

Finalement, une conclusion générale résume l'ensemble des résultats et analyses présentés dans cette thèse. Elle est suivie de recommandations servant à proposer une piste pour des recherches subséquentes.

CHAPITRE 1

REVUE DE LA LITTÉRATURE

Ce chapitre présente une revue de la littérature s'intéressant aux syngas et plus particulièrement à la vitesse de la flamme laminaire et à la stabilité de la flamme. Le syngas demeure un carburant méconnu. La première section de ce chapitre offre donc une présentation générale concernant l'histoire et les moyens de production de ce carburant. Ensuite, les impacts de la composition du syngas et de la température initiale du carburant sur la vitesse laminaire de flamme sont présentés. L'un des impacts observés dans la littérature est que certaines conditions causent la déstabilisation et l'accélération du front de flamme. La troisième section de ce chapitre aborde les mécanismes qui causent cette déstabilisation et revoit les conditions dans lesquelles ce phénomène est observé. Les problématiques notées au cours de la revue de littérature sont résumées à la section 1.4. Ces problématiques mènent à la formulation d'un objectif de recherche, présenté à la fin du chapitre.

1.1 Présentation des syngas

1.1.1 Historique des syngas

C'est au début du XVII^e siècle qu'un chimiste et physicien belge, Jan Baptista Van Helmont, a découvert qu'il était possible de générer un gaz en chauffant suffisamment du charbon ou du bois (National Energy Technology Laboratory). Au cours des deux siècles qui suivent, plusieurs expériences sont réalisées afin d'améliorer le processus de gazéification de la matière solide. Les premiers brevets consacrés à la production de ce gaz, qui est un mélange d'hydrogène (H_2) et de monoxyde de carbone (CO) souvent accompagné de dioxyde de carbone (CO_2), et à son utilisation dans un moteur (Famous Inventor, 2017), sont accordés à la fin du XVIII^e siècle. Au début du XIX^e siècle, ce gaz, alors appelé « *town gas* » et produit à partir du charbon, servait à l'éclairage des rues et des habitations bien avant le gaz naturel ou l'électricité. Toutefois, au début du XX^e siècle, ces deux dernières sources d'énergie avaient remplacé le « *town gas* » (National Energy Technology Laboratory). Le manque de

pétrole en Europe durant la Deuxième Guerre mondiale a renouvelé l'intérêt envers la gazéification afin de produire le carburant nécessaire pour les véhicules. La technologie retenue consistait à installer sur une voiture un gazéificateur de copeaux de bois. Le gaz obtenu (appelé « wood gas » à cette époque) était alors nettoyé et acheminé au moteur du véhicule, qui n'avait subi que quelques modifications. Cette technologie avait été développée dès les années 1920 en Allemagne (le générateur Imbert), en France et en Suède, où la promotion gouvernementale de cette technologie avait commencé dès 1932 (Solar Energy Research Institute, 1979). À la fin de la Deuxième Guerre mondiale, près de 500 000 voitures allemandes étaient propulsées avec du « wood gas » (Low-Tech Magazine, 2010). En Suède, 11% des voitures, 55% des camions et 77% des autobus civils fonctionnaient avec du bois gazéifié. Toutefois, cette technologie est tombée en désuétude dès la fin de la Guerre, quand l'approvisionnement en pétrole fut rétabli. Le développement industriel de la gazéification a diminué, mais s'est poursuivi après la Guerre, s'axant plus particulièrement sur la production de produits chimiques (gagnant ainsi son nom de « synthetic gas », ou syngas pour faire court). Cependant, la hausse des coûts de l'énergie au début des années 1990 a ravivé l'intérêt pour la production d'électricité par du syngas (National Energy Technology Laboratory).

Le remplacement de l'électricité produite directement par du charbon par une électricité produite par la combustion des syngas provenant de la gazéification de ce même charbon devrait générer des bénéfices environnementaux importants (Department of Mechanical and Structural Engineering and Material Science, 2010; Lieuwen, Yang et Yetter, 2010). La Figure 1.1 présente les résultats d'une analyse du National Energy Technology Laboratory (2015a; 2015b) du département américain de l'énergie portant sur les principaux polluants émis lors de l'utilisation du charbon. Les scénarios envisagés dans cette analyse comparent les technologies conventionnelles de centrales au charbon à la technologie commercialement viable la plus avancée pour le syngas, c'est-à-dire la technologie de gazéification intégrée à un cycle combiné (GICC). Les centrales GICC sont composées de trois parties majeures : le gazéificateur, le purificateur et les turbines. La matière première est premièrement acheminée au gazéificateur où elle est transformée en syngas. Ce syngas contient toutefois plusieurs

impuretés telles que des oxydes de soufre, du mercure, des traces de métaux lourds et des carbonyles (ex. : $\text{Fe}(\text{CO})_5$). Ces impuretés, initialement contenues dans la matière première, ont été libérées et transformées durant la gazéification. Le syngas impur passe donc par différentes étapes de purification avant d'être utilisé. Le syngas propre est finalement acheminé vers une turbine à gaz qui génère de l'électricité en brûlant le syngas. Les gaz chauds rejetés par la turbine à gaz sont ensuite utilisés pour générer de la vapeur d'eau qui, en passant par la turbine à vapeur, produit à nouveau de l'électricité.

L'utilisation de la technologie GICC permet une réduction moyenne de 98% en oxydes de soufre (SO_x), de 27% en oxydes d'azote (NO_x), de 52% en particules fines (PM) et de 13% en CO_2 par rapport aux centrales au charbon conventionnelles, dont celles à charbon pulvérisé (CP). La réduction des émissions de CO_2 pourrait même être réduite de 24% (Ordorica-Garcia, Douglas, Croiset et Zheng, 2006). Les réductions en émission de CO et de mercure pourraient quant à elles atteindre 82% et 66% respectivement (Lieuwen et al., 2010, p. VII) par rapport au charbon.

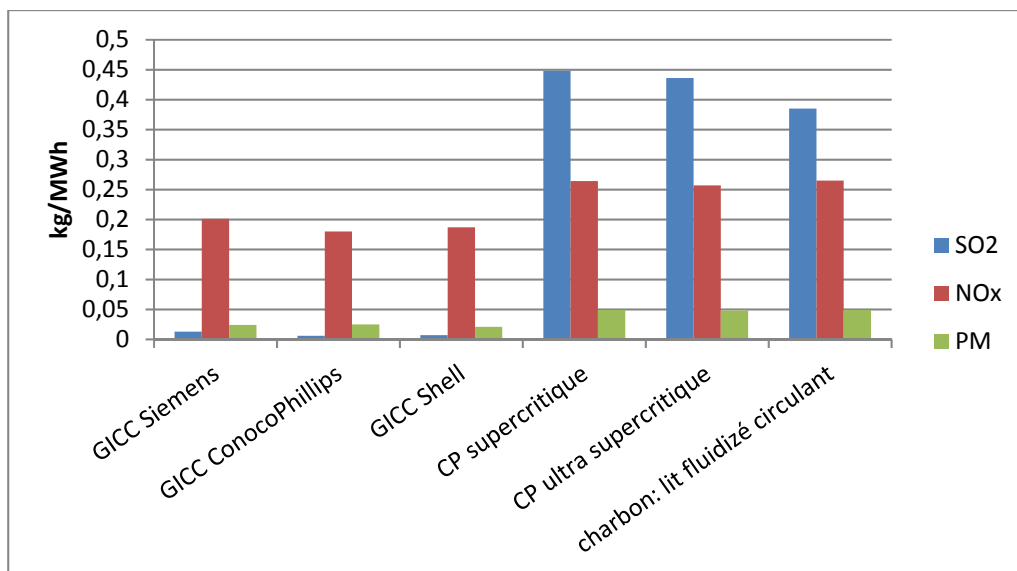


Figure 1.1 Comparaison des émissions de SO_2 , NO_x et PM entre les technologies GICC et les centrales au charbon conventionnelles (données provenant du National Energy Technology Laboratory (2015a; 2015b))

1.1.2 Moyens de fabrication et composition

Il existe trois types majeurs de procédés de gazéification : à lit mobile, à lit fluidisé et à lit entraîné (Richards et Castleton, 2010). Les avantages et les désavantages de ces techniques, de même que des exemples d'applications commerciales, ont été révisés par Hossein Sahraei, McCalden, Hughes et Ricardez-Sandoval (2014). Le charbon est la matière première la plus gazéifiée, fournissant près de 70% du syngas mondial. Le pétrole et le gaz naturel fournissent près de 13% chacun, tandis que la biomasse n'est la source que de 1% du syngas (Gasification Technologies Council, 2015). Le choix de la matière première influence fortement le choix du procédé de par la réactivité de la matière première et la température de gazéification. Ainsi, la réactivité de la biomasse est souvent supérieure à celle des charbons, ce qui implique qu'un procédé de gazéification à plus basse température est nécessaire pour convertir la biomasse que pour convertir le charbon. Le procédé à lit fluidisé, qui fonctionne à basse température, est par exemple bien adapté à la gazéification de la biomasse (Richards et Castleton, 2010). Dans les procédés à haute température, l'énergie initiale mise à faire chauffer la matière première est considérée comme étant « perdue » et réduit donc le rendement thermique du processus.

Peu importe le procédé de gazéification retenu, le processus chimique est sensiblement le même et est illustré à la Figure 1.2 (Richards et Castleton, 2010). La matière première solide (charbon ou biomasse préalablement réduit en fines particules) et un oxydant (oxygène ou air) sont acheminés en continu dans le gazéificateur. Grâce à la température et à la pression régnant dans le gazéificateur, le carbone contenu dans la matière solide (taches grises sur la Figure 1.2) réagit avec l'oxygène. Le gazéificateur est maintenu à la température désirée grâce à la chaleur dégagée par les réactions de gazéification, qui sont présentées à droite sur la Figure 1.2. De l'eau peut être ajoutée dans le processus afin d'augmenter la concentration finale en H_2 en favorisant la réaction de conversion du gaz à l'eau. L'eau peut aussi permettre de contrôler la température du réacteur. La majeure partie du solide est transformée en un gaz (flèches bleues) qui est ensuite acheminé vers les diverses étapes de purification (la désulfuration des gaz issus du charbon par exemple) avant d'être brûlé dans la chambre à

combustion de la turbine à gaz. Néanmoins, une partie du carbone peut se coaguler et former des suies tandis que les impuretés dans la matière première se transforment en cendres. Ces résidus solides (points noirs) tombent dans le bas du gazéificateur où ils sont évacués.

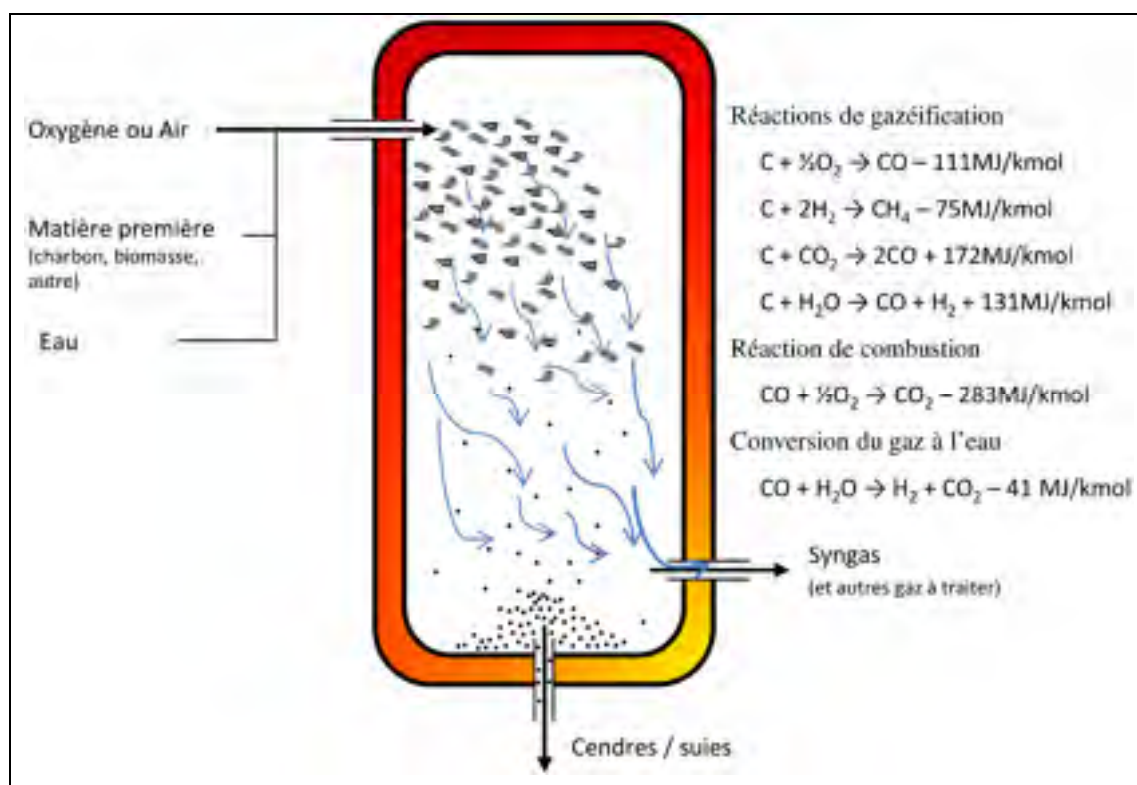


Figure 1.2 Schématisation du procédé de gazéification.
Adaptée de Richards et Castleton (2010)

Idéalement, le syngas est un carburant composé exclusivement de H_2 et de CO , avec un ratio H_2/CO élevé. Dans la pratique, la gazéification est un processus complexe qui résulte en la formation de coproduits gazeux (CO_2 , méthane (CH_4)) ou solide (cendre, suies). Les coproduits solides, de même que les impuretés, seront retirés afin que seuls les gaz soient acheminés à la chambre de combustion. Molière (2002) présente les compositions des syngas utilisés dans des turbines à gaz stationnaires pour produire de l'électricité dans diverses parties du monde. Plusieurs études montrent aussi les compositions qui peuvent être obtenues par la gazéification de la biomasse (Couto, Rouboa, Silva, Monteiro et Bouziane, 2013; Göransson, Söderlind, He et Zhang, 2011; Sun, Li, Yang, Kai et He, 2013). La Figure 1.3

présente la distribution des principaux combustibles présents dans les syngas évalués dans ces études (dans cette thèse, les diluants sont improprement aussi désignés par le terme combustible afin de simplifier l'appellation des éléments des syngas). En observant les différentes compositions, on remarque que le ratio H_2/CO varie de 0,33 à 2,36, mais qu'il est généralement légèrement inférieur à 1. Pour sa part, la concentration en CO_2 peut atteindre jusqu'à 30%. La concentration en CH_4 est généralement autour de 5% pour les syngas issus du charbon et peut atteindre jusqu'à 15% dans les syngas issus de la biomasse. De plus, Molière (2002) mentionne que certains opérateurs de turbines à gaz ajoutent volontairement du CH_4 pour faire une co-combustion syngas- CH_4 .

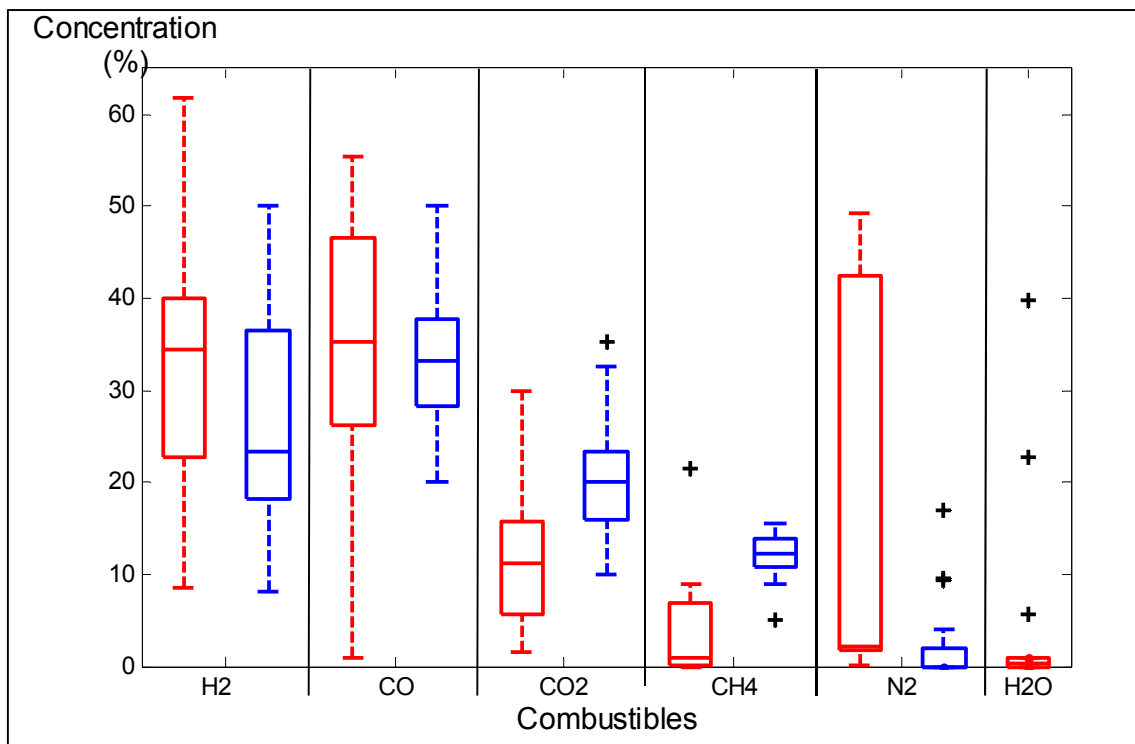


Figure 1.3 Distribution de chaque combustible dans des syngas commerciaux. En bleu : syngas issus de la gazéification du charbon. En rouge : syngas issus de la gazéification de la biomasse. Tiré des données de Couto et al. (2013); Göransson et al. (2011); Molière (2002); Sun et al. (2013)

1.1.3 Utilisation des syngas

La substantielle variabilité de la composition du syngas est un obstacle majeur pour le développement à grande échelle de cette technologie, car la quantité de polluants générée dépend entre autres de la composition du syngas (Whitty, Zhang et Eddings, 2010, p. 169). De plus, un carburant ayant un pouvoir calorifique plus faible nécessitera un plus grand débit de carburant afin que la puissance de la turbine demeure constante. Ceci a deux implications. Premièrement, un ajustement du débit d'air est requis, en fonction du ratio air/carburant désiré. Dans le cas où l'ajustement correspond à une augmentation du débit d'air (par exemple afin de maintenir le ratio air/carburant constant), ceci entraînera une plus grande perte de pression dans la chambre à combustion, ce qui cause une perte de puissance et donc une diminution du rendement thermique (Lefebvre et Ballal, 2010, pp. 114-117; Richards, Castleton et Weiland, 2010, p. 198). Deuxièmement, une modification dans le débit de carburant change les caractéristiques de pénétration du jet, un jet plus lent réduisant le taux de mélange entre le carburant et l'air. Comme la pénétration du jet est inversement proportionnelle à l'indice de Wobbe d'un carburant (ratio entre le pouvoir calorifique et la densité) (Richards et al., 2010, p. 198), il est recommandé que cet indice varie de moins de 5% par rapport à la valeur pour laquelle la turbine a été conçue (Lefebvre et Ballal, 2010, p. 468). Comprendre comment la variabilité de la composition du carburant influence la combustion est donc primordial afin de concevoir des turbines efficaces pouvant fonctionner sur une large plage de composition (Cheng, 2010).

Dans les premières turbines à gaz, le carburant et l'oxydant (l'air) entraient séparément dans la chambre à combustion, où ils se diffusaient l'un vers l'autre pour former une flamme de diffusion (Turns, 2011, p. 486). Ce mode de combustion a l'avantage d'être simple (pas besoin de gérer le mélange entre l'air et le carburant) et plus facile à contrôler (Turns, 2011, p. 486) (c'est-à-dire plus stable (Jansohn, 2013, section 5.1)). Toutefois, afin de réduire les émissions de polluants, particulièrement de CO et d'oxydes d'azote (NOx), les turbines à gaz sont maintenant conçues pour fonctionner avec des flammes pré-mélangées (Cheng, 2010, p. 129; Jansohn, 2013, section 5.1; Lefebvre et Ballal, 2010, p. 415; Turns, 2011, p. 486) dans

lesquelles, comme leur nom l'indique, le carburant et l'air sont mélangés avant la combustion. La concentration relative entre l'air et le carburant est exprimée par la richesse (ϕ), qui est le rapport entre le ratio massique air/carburant employé dans une situation donnée et le ratio massique air/carburant stœchiométrique (quantité d'oxygène minimale qui permet d'oxyder entièrement le carburant). Un mélange est dit stœchiométrique lorsque $\phi = 1$, riche en carburant lorsque $\phi > 1$, et pauvre lorsque $\phi < 1$.

De plus, la combustion dans les turbines à gaz s'effectue dans un écoulement turbulent, caractérisée par la variation rapide et aléatoire de la vitesse des gaz à un endroit donné (Law, 2006, p. 474). Les concepteurs des chambres à combustion disposent de plusieurs outils pour calculer et prédire le comportement général de la combustion dans un tel écoulement (Gonzalez-Juez, Kerstein, Ranjan et Menon, 2017), mais tous ces outils reposent sur les caractéristiques laminares de la flamme. Entre autres, il existe plusieurs régimes servant à caractériser l'intensité de la turbulence. Les frontières entre ces régimes sont déterminées à l'aide des nombres de Reynolds turbulent (Re_T), de Karlovitz turbulent (Ka_T) et de Damköhler (Da), qui sont fonction de l'épaisseur laminaire et de la vitesse laminaire de flamme (Cheng, 2010, p. 137). La simulation en régime « flamelet » est l'approche la plus fréquemment employée pour simuler les flammes turbulentes (Ratzke, Schöffler, Kuppa et Dinkelacker, 2015). Dans cette approche, la vitesse de propagation turbulente est proportionnelle à l'intensité de la turbulence (Re_T , Ka_T et/ou Da) et à la vitesse laminaire de flamme (Lin, Jansohn et Boulouchos, 2014; Turns, 2011, pp. 465-468). Toutefois, la vitesse turbulente peut être augmentée par le développement, sur le front de flamme, d'instabilités intrinsèques à la combustion (c'est-à-dire qui sont indépendantes de la nature de l'écoulement) (Law, 2006, p. 477). Deux paramètres sont particulièrement importants lors de la conception des turbines à gaz: la vitesse laminaire de flamme et la stabilité intrinsèque de la flamme.

1.2 Vitesse laminaire de flamme

Par définition, la vitesse laminaire de flamme (S_u^0) est la vitesse à laquelle un front de flamme plat se déplace sans contrainte dans les gaz frais dans la direction perpendiculaire à sa surface. Cette vitesse est indépendante de la géométrie du brûleur, de la vitesse de l'écoulement ou de la forme de la flamme. À des conditions de pression, température et richesse données, la vitesse laminaire de flamme est une propriété unique à chaque carburant, donnant des indications sur la réactivité et la diffusivité du carburant ainsi que sur sa capacité à dégager de la chaleur (Law, 2006, p. 234). En plus d'être un prérequis nécessaire à l'étude des flammes turbulentes (Turns, 2011, p. 258), S_u^0 dicte certaines caractéristiques de stabilité de la flamme telles que la résistance au soufflement ou au retour de flamme. Ces caractéristiques influencent le dimensionnement de l'injecteur et la détermination du débit de carburant. S_u^0 est aussi employée pour valider et optimiser les cinétiques chimiques utilisées lors de simulations numériques durant la phase de conception des chambres de combustion. En synthèse, la vitesse laminaire de flamme est un paramètre essentiel pour simuler et comprendre la combustion. Ce paramètre a donc fait l'objet d'une attention particulière de la part des chercheurs, et ce sous plusieurs conditions d'opération.

De nombreuses études ont été effectuées sur les syngas purs afin de comprendre les effets de la richesse et du ratio H_2/CO sur S_u^0 . Toutefois, peu d'études évaluent l'impact de l'ajout d'un troisième combustible dans le carburant. Un certain nombre d'études rapportent l'impact de la dilution. Cependant, les études rapportant l'impact de la co-combustion avec un hydrocarbure tel que le méthane sont beaucoup plus rares.

1.2.1 Effet du ratio H_2/CO

Il existe plusieurs articles (Bouvet, Chauveau, Gökalp, Lee et Santoro, 2011a; Dong, Zhou, Zhao, Zhang, Xu et al., 2009; Natarajan, Lieuwen et Seitzman, 2007; Wang, Weng, He, Li et Cen, 2015) ayant rapporté l'effet du ratio H_2/CO sur S_u^0 des syngas purs aux conditions ambiantes. Ces études ont aussi porté sur la richesse (ϕ). Les résultats de la littérature présentent tous les mêmes tendances. Globalement, pour un ratio H_2/CO donné, la vitesse

croît rapidement et linéairement en fonction de ϕ lorsque la richesse est faible. Puis, la croissance de la vitesse diminue jusqu'à ce que S_u^0 atteigne son maximum, après quoi S_u^0 décroît, d'abord lentement puis un rythme de décroissance constant jusqu'à ce que le mélange soit trop riche pour soutenir la flamme. Pendant ce temps, à une richesse donnée, S_u^0 augmente avec l'augmentation du ratio H_2/CO . La Figure 1.4 présente un exemple de la variabilité de S_u^0 pour une combustion à la pression atmosphérique (1 atm). Les vitesses à 80% H_2 peuvent être jusqu'à trois fois supérieures de celles à 20% H_2 . Pour des carburants ayant un ratio H_2/CO élevé (c'est-à-dire supérieur à 75% H_2), S_u^0 passe de 0,9 m/s en mélange pauvre à un maximum de plus de 2 m/s en mélange riche. Pour les carburants ayant un ratio H_2/CO faible (inférieur à 25% H_2), les vitesses varient plutôt entre 0,35 et 1 m/s en fonction de ϕ (Dong et al., 2009). Ces vitesses et leurs variations en fonction de la richesse sont notablement différentes et supérieures à celles des carburants présentement utilisés en turbines à gaz ou en moteur, que ce soit le gaz naturel, le kérosène ou l'essence, dont les vitesses varient généralement entre 0,2 et 0,4 m/s (Turns, 2011) sous conditions atmosphériques.

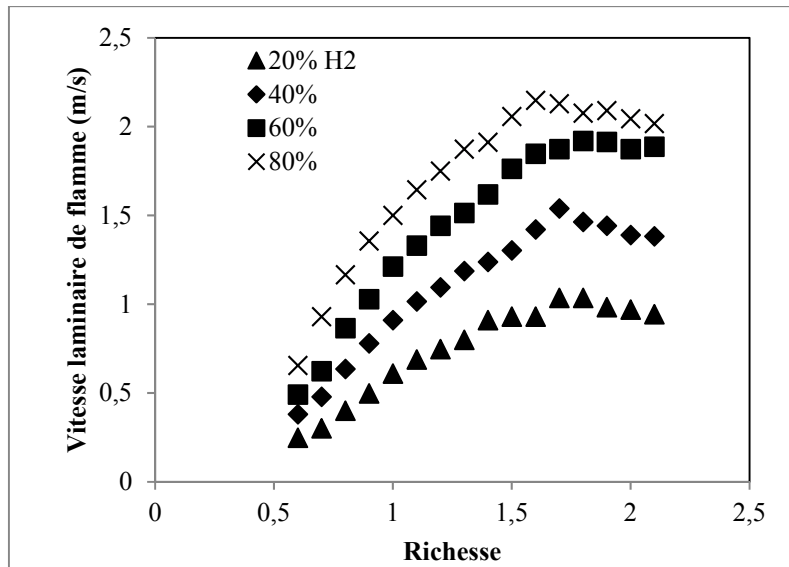


Figure 1.4 Vitesse laminaire de flamme des carburants H_2/CO en fonction de la richesse. Adaptée de (Dong et al., 2009)

Bouvet et al. (2011a) ont utilisé un brûleur Bunsen afin de mesurer la vitesse de flamme de carburants H_2/CO sur des richesses couvrant la plage 0,3 — 1,2. Leurs résultats, qu'ils résument sous la forme d'une corrélation, montrent que la vitesse de flamme évolue linéairement autant en fonction de la richesse que de la concentration en H_2 sur les plages $0,6 < \varphi < 1,0$ et $10\% < H_2 < 70\%$.

Dong et al. (2009) ont aussi utilisé un brûleur Bunsen pour établir une corrélation pour la vitesse de flamme des carburants H_2/CO dont le contenu en H_2 varie entre 1% et 100%, et ce pour la plage de richesse allant de 0,7 à 2,2. Conformément aux résultats de Bouvet et al. (2011a), un accroissement quasi linéaire de S_u^0 est observé lorsque la concentration en H_2 est située entre 20% et 80%. Aux deux extrémités de concentration, la vitesse de flamme augmente plus rapidement que dans la région centrale à cause d'une plus grande sensibilité à la concentration et à la réactivité du H_2 .

Dong et al. (2009) observe que l'évolution de la vitesse en fonction de la richesse prend l'aspect d'une cloche, la vitesse atteignant un maximum vers $\varphi = 1,7$. D'autres mesures effectuées sur une flamme en expansion sphérique (Sun, Yang, Jomaas et Law, 2007) ou avec un brûleur Bunsen (Burbano, Peareja et Amell, 2011) sur une large plage de richesse et de ratio H_2/CO montrent plutôt que la vitesse atteint son maximum à une richesse plus élevée quand le ratio H_2/CO est faible. Toutefois, les vitesses rapportées par les différentes études montrent un moins bon accord entre elles lorsque $\varphi \geq 1,5$, et le désaccord est particulièrement grand pour les richesses près de la vitesse maximale (Lee, Jiang et Mohamad, 2014). L'incertitude sur la valeur de la vitesse maximale, de même que la richesse où elle est atteinte, est donc élevée. Burbano et al. (2011) notent que les rares résultats à haute richesse ont été obtenus sur des flammes en expansion sphérique (McLean, Smith et Taylor, 1994; Prathap, Ray et Ravi, 2008; Sun et al., 2007) pour lesquelles il n'y a pas de consensus sur la plage de rayon à employer afin de déterminer S_u^0 . Il est difficile de conclure quoi que ce soit à ce sujet pour les études de McLean et al. (1994) et de Sun et al. (2007) puisqu'ils ne mentionnent pas la plage de rayon qu'ils ont employé. Toutefois, Prathap et al. (2008) précisent avoir utilisé des rayons compris entre un minimum de 4,5 mm et un maximum de

62 mm. Ce rayon minimum, bien que légèrement inférieur au 6 mm recommandé par Monteiro, Bellenoue, Sotton, Moreira et Malheiro (2010), devrait être suffisamment élevé pour être indépendant de l'énergie d'allumage. Le rayon maximum pour sa part correspond à 32% du rayon de leur bombe à combustion, suffisamment proche du 30% requis selon Burke, Chen, Ju et Dryer (2009) pour éviter les effets de confinement. Des résultats supplémentaires à haute richesse, particulièrement près de la richesse maximale, sont donc nécessaires afin de mieux évaluer S_u^0 .

1.2.2 Effet de la dilution au N₂ ou au CO₂

Le CO₂ influence la vitesse de flamme par l'entremise des mécanismes thermique (en diminuant la température de combustion) et cinétique (en favorisant des réactions de dissociations du CO₂). Lorsque la proportion de CO₂ dans le syngas est faible (~ 5%), la diminution de S_u^0 est causée à part pratiquement égale par les deux mécanismes (Halter, Foucher, Landry et Mounaïm-Rousselle, 2009). Toutefois plus la quantité de CO₂ augmente, plus la température de combustion diminue. À plus faible température, la dissociation du CO₂ est limitée et l'impact du mécanisme thermique sur S_u^0 devient dominant (Di Benedetto, Di Sarli, Salzano, Cammarota et Russo, 2009; Halter et al., 2009).

Dans une série d'articles, Natarajan *et al.* (Natarajan, Kochar, Lieuwen et Seitzman, 2009; Natarajan et al., 2007; Natarajan, Nandula, Lieuwen et Seitzman, 2005) rapportent des mesures expérimentales de S_u^0 de carburants H₂/CO/CO₂ pauvres et stœchiométriques. Les mesures sont effectuées à l'aide d'un brûleur Bunsen et certaines sont contrevérifiées avec la méthode de la flamme en stagnation, qui tient en compte l'étirement de la flamme. La différence entre les résultats des deux méthodes est de moins de 3% (Natarajan et al., 2007). Les résultats sont comparés aux S_u^0 obtenues par plusieurs cinétiques chimiques dont celle de Davis (Davis, Joshi, Wang et Egolfopoulos, 2005) et GRI-Mech 3.0 (Smith, Golden, Frenklach, Moriarty, Eiteneer et al.). Ils observent que toutes les cinétiques reproduisent correctement les résultats expérimentaux, la plus précise étant celle de Davis. Pour les carburants contenant du CO₂, l'absence d'un écart notable entre les résultats numériques et

expérimentaux malgré l'exclusion des effets de la radiation dans la simulation indique que cet effet est négligeable.

Utilisant une flamme en expansion sphérique, Prathap, Ray et Ravi ont étudié l'influence, sur S_u^0 de syngas équimolaires, de la dilution au N_2 (jusqu'à 60% par volume) (Prathap et al., 2008) et au CO_2 (jusqu'à 30%) (Prathap, Ray et Ravi, 2012). Les mesures de vitesses sont faites à plusieurs richesses couvrant une large plage $0,6 \leq \varphi \leq 3,0$. Les résultats numériques obtenus avec la cinétique de Davis se comparent positivement aux résultats expérimentaux. Avec l'ajout de N_2 ou de CO_2 , S_u^0 décroît notablement à cause de la hausse de la capacité thermique massique du mélange (ce qui entraîne une baisse de la température de flamme) et de la décroissance de la diffusivité thermique. De plus, leurs résultats suggèrent que le CO_2 inhibe plus S_u^0 que ne le fait le N_2 . Cette inhibition supplémentaire pourrait être causée par la participation active du CO_2 dans les réactions chimiques, entre autres via la réaction de ramification $CO + OH = CO_2 + H$. Ils observent aussi que la richesse où S_u^0 atteint son maximum se déplace vers les mélanges plus pauvres avec l'ajout d'un diluant. Cette richesse, qui est à $\varphi = 2,0$ dans les carburants sans dilution, passe à 1,4 et 1,6 avec l'ajout de 60% N_2 et 30% CO_2 respectivement. Toutefois, ils n'observent pas ce déplacement si la concentration de diluant est indépendante de la richesse (en fixant la concentration de diluants dans le mélange O_2 -carburant plutôt que dans le carburant seul). L'observation de ce déplacement repose principalement sur les résultats de cinétiques puisque des mesures sont prises seulement aux richesses de $\varphi = 1,4, 1,6, 2,0$ et $2,5$ dans la zone environnant cette vitesse maximale. Expérimentalement, seul le carburant contenant 30% de CO_2 voit son sommet être déplacé à $\varphi = 1,6$, tandis que la vitesse maximale est observée à $\varphi = 2,0$ pour des proportions en CO_2 de 0, 10 et 20%. Conséquemment, des mesures effectuées sur un pas de richesse plus faible sont nécessaires pour valider cette observation. Finalement, à un φ donné, ils observent que la diminution de S_u^0 est plus grande dans les mélanges riches.

Burbano et al. (2011) rapportent des résultats obtenus avec un brûleur Bunsen pour des flammes 50/50 H_2/CO ayant 0, 10 et 20% de CO_2 . Grâce à leur pas de richesse de 0,2 aux richesses près de la vitesse maximale, ils voient que la vitesse maximale se déplace de

$\varphi = 2,0$ à 10% CO_2 vers $\varphi = 1,8$ à 20% CO_2 . Toutefois, contrairement aux carburants contenant 0 et 10% de CO_2 , pour lesquels la vitesse est mesurée à $\varphi = 1,8, 2,0$ et $2,2$, la vitesse du carburant contenant 20% CO_2 n'est pas mesurée à $\varphi = 2,0$. En l'absence de ce point de mesure, l'hypothèse postulant que la vitesse maximale demeure à $\varphi = 2,0$ n'est donc pas évaluée, ce qui rend leur conclusion incertaine.

Pour leur part, Kishore, Ravi et Ray (2011) ont utilisé un pas de richesse de 0,1 sur toute leur plage de richesse (0,8 — 1,8) pour étudier l'effet du CO_2 (40% — 60% par volume) sur la vitesse de flamme de carburants H_2/CO ayant des ratios de 4/1, 1/1 et 1/4. Même avec ce pas plus fin, ils observent un déplacement du sommet de vitesse avec l'augmentation de la concentration en CO_2 . Leurs résultats montrent en outre une forte corrélation entre la vitesse de flamme et la somme des radicaux $\text{H} + \text{OH}$ calculée au moment où H atteint un maximum. La vitesse de flamme atteint son sommet là où cette somme de radicaux $\text{H} + \text{OH}$ atteint aussi son maximum. La proportion de CO_2 employée dans leur étude, entre 40 et 60%, est toutefois très élevée, cette proportion dépassant rarement les 30% dans les applications réelles (Jones et Shilling, 2003; Molière, 2002; Sun et al., 2013).

1.2.3 Effet de la température initiale

Dans leur série d'articles, Natarajan et al. (Natarajan et al., 2009; Natarajan et al., 2007; Natarajan et al., 2005) ont aussi évalué l'effet de la température initiale sur S_u^0 des syngas pauvres et stœchiométrique. Tel qu'attendu, ils notent qu'une augmentation de la température accroît S_u^0 . Par contre, si les cinétiques utilisées prédisent les bonnes S_u^0 à la température ambiante, la sensibilité de S_u^0 envers la température n'est pas correctement reproduite. L'écart devient particulièrement significatif pour $T \geq 500$ K. Globalement, la dépendance à la température est surestimée, les prédictions étant jusqu'à 25% supérieures aux résultats expérimentaux à 700 K. Toutefois, la dépendance est sous-estimée dans les carburants pauvres en H_2 (5/95 H_2/CO), et les vitesses prédites sont inférieures aux résultats expérimentaux. Les mesures sur la flamme plate confirment ces tendances, mais avec des écarts plus faibles (Natarajan et al., 2007). Suite à une analyse de sensibilité menée sur la

cinétique de Li (Li, Zhao, Kazakov, Chaos et Dryer, 2007), Natarajan et al. (2007) imputent la responsabilité des écarts sur la dépendance à la température aux réactions $H + O_2 + M = HO_2 + M$, $HO_2 + H = 2OH$ et $H_2 + OH = H_2O + H$, en notant que leurs sommets de production et de consommation de H, qui étaient distincts à 300 K, sont plutôt concomitants à 700 K.

Pour leur part, Singh, Nishiie, Tanvir et Qiao (2012) ont utilisé la flamme en expansion sphérique pour étudier l'impact de la température initiale sur la vitesse de flamme d'un carburant 50/50 H_2/CO sur une plage de richesse plus étendue (0,6 — 3,0). Leurs résultats montrent bien l'accroissement de la vitesse lié à l'augmentation de la température initiale sur toute la plage de richesse. Pour les mélanges pauvres, les prédictions obtenues avec trois cinétiques chimiques (GRI-Mech 3.0 et Davis déjà étudiés par Natarajan et al. (2005, 2007, 2009) et la cinétique de San Diego (Mechanical and Aerospace Engineering (Combustion Research), 2012)) sont similaires aux résultats expérimentaux. Les vitesses dans les mélanges riches sont aussi bien prédites à 300 K et 400 K. Par contre, elles sont fortement surestimées à 500 K. Toutefois, leurs mesures dans les mélanges riches se limitent aux seules richesses de $\varphi = 2,0$ et 3,0.

1.2.4 Effet de l'addition de CH_4

Quelques études s'intéressent à l'ajout de CH_4 dans les syngas (Kwon, Rozenchan et Law, 2002; Vu, Park, Kim, Kwon, Yun et al., 2011a), mais leur objectif principal est de comprendre comment le CH_4 affecte la formation des instabilités cellulaires dans la flamme en expansion sphérique. Un plus grand nombre d'études s'est intéressé à la vitesse de flamme dans les carburants H_2/CH_4 . Qu'il soit ajouté au syngas ou au H_2 , les études montrent que le CH_4 cause, à une richesse donnée, une diminution non linéaire de la vitesse de flamme. Les études menées par Hu, Huang, He, Jin et Zheng (2009a) et Sarli et Benedetto (2007) sur des carburants H_2/CH_4 ont permis de montrer que la décroissance de la vitesse induite par l'ajout de CH_4 procède selon trois régimes: Il y a tout d'abord une décroissance rapide suivie d'un régime de transition où la vitesse décroît exponentiellement quand la concentration de CH_4 se

situe entre 20% et 50% et finalement une lente décroissance de la vitesse quand le CH_4 devient majoritaire.

Hu et al. (2009a) montrent aussi que tant que la concentration en H_2 est inférieure à 40%, la richesse où la vitesse atteint son maximum ne change pas, restant toujours légèrement supérieure à 1,0. Autrement dit, les impacts d'un changement de la concentration en CH_4 sont similaires dans les mélanges pauvres et les mélanges riches. Toutefois, lorsque la concentration de H_2 devient supérieure à 40%, la vitesse de flamme maximale est atteinte à des mélanges de plus en plus riches, le H_2 pur atteignant sa vitesse maximale à $\varphi \sim 1,8$. Ces observations sont corroborées par les études de Huang, Zhang, Zeng, Liu, Wang et al. (2006) et Sarli et Benedetto (2007).

1.3 Les instabilités du front de flamme

Il existe très peu de résultats de S_u^0 à des conditions de pression élevées. Cette absence de résultats est due à l'apparition, sur le front de flamme, de structures de nature cellulaire. La cellularité est une forme d'instabilité observée durant la combustion qui affecte la surface de la flamme. La Figure 1.5A est typique d'un front de flamme affecté par la cellularité, en comparaison avec le front de flamme lisse et laminaire de l'image de la Figure 1.5B. Les cellules qui se forment sur le front de flamme sont en fait des plissements, réguliers ou non, qui augmentent l'aire de la flamme. La cellularité se développe dans les mélanges où la diffusivité du réactif limitant présente un écart important avec la diffusivité du réactif excédant. La haute diffusivité du H_2 rend donc le syngas particulièrement propice au développement de cellules.

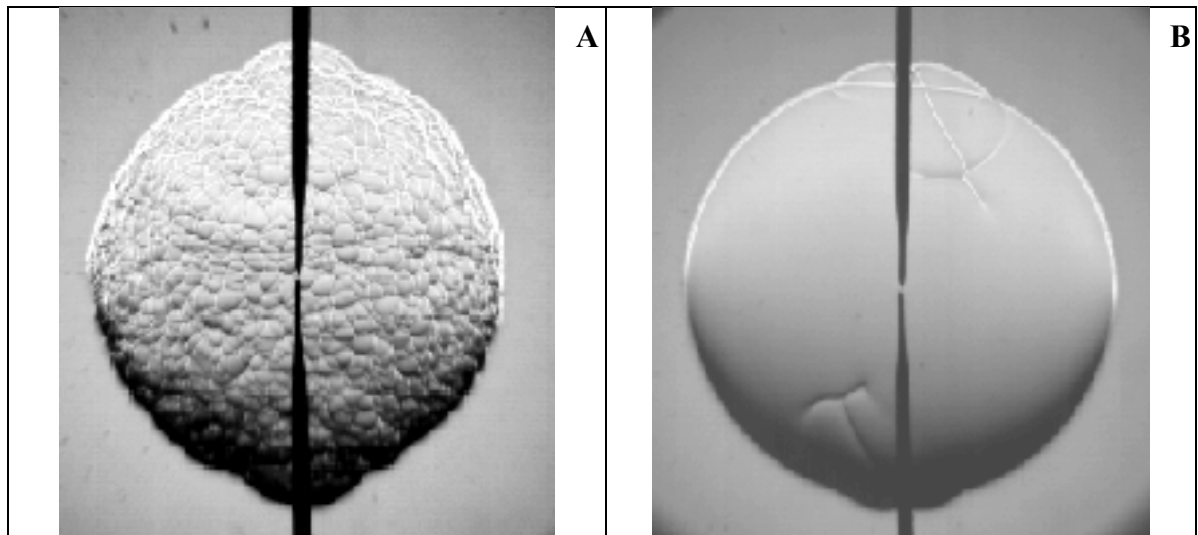


Figure 1.5 Comparaison entre une flamme cellulaire (A) et une flamme stable (B)

Les cellules apparaissent entre autres durant l'expansion sphérique de la flamme. Toutefois, le moment où les cellules apparaissent dépend de plusieurs paramètres, dont la composition du carburant et la pression initiale. Le rayon que la flamme peut parcourir en régime laminaire, sans instabilité cellulaire, est appelé rayon critique (R_{cr}). Le front d'une flamme en expansion sphérique conserve ses propriétés laminaires jusqu'à l'atteinte de R_{cr} . Après quoi, les cellules apparaissent, engendrant des plissements sur le front. Des études ont montré que ces plissements entraînaient une augmentation de la vitesse de flamme (Addabbo, Bechtold et Matalon, 2002). Avec l'augmentation du rayon de la flamme, les cellules se subdivisent et se multiplient, entraînant une autoaccélération de la propagation de la flamme, qui ne se propage donc plus à sa vitesse laminaire telle que définie à la section 1.2. Cette autoaccélération est potentiellement un précurseur de turbulence (Kwon et al., 2002; Yang, Saha, Wu et Law, 2016). Cette instabilité peut aussi engendrer de la détonation dans les moteurs à allumage commandé (Vu, Song, Park, Bae et You, 2011b).

Cette section passe tout d'abord en revue les différents mécanismes causant l'apparition de cellules. Ensuite, la revue de littérature identifie l'impact de plusieurs facteurs sur R_{cr} .

1.3.1 Notions fondamentales

Les instabilités de surface se déclinent en trois types: l'instabilité gravitationnelle, l'instabilité thermodiffusive et l'instabilité hydrodynamique.

1.3.1.1 Instabilité gravitationnelle

À cause de la gravité, un fluide léger se situant sous un fluide lourd cherchera à remonter au-dessus du fluide lourd. Par exemple, dans une flamme en expansion sphérique, les gaz brûlés de la moitié supérieure de la sphère sont plus chauds, donc plus légers, que les gaz frais situés de l'autre côté du front de flamme. Dans cette situation, les gaz chauds poussent sur le front de flamme afin de s'élever, ce qui déstabilise le front. Ce mécanisme est nommé instabilité gravitationnelle (Law, 2006, p. 459). Toutefois, cette instabilité a un impact significatif seulement à des vitesses de flamme inférieures à 0,15 m/s (Qiao, Kim et Faeth, 2005). Son impact sur les carburants hydrogénés ayant des vitesses de flamme élevées est donc mineur comparé à l'impact des deux autres types d'instabilité. L'instabilité gravitationnelle est donc négligée dans ce travail.

1.3.1.2 Instabilité thermodiffusive

L'instabilité thermodiffusive est principalement causée par la non-équidiffusion, c'est-à-dire par l'écart entre les flux de diffusion thermique et massique (Law, 2006). Cet écart entre les flux de diffusion est représenté par le nombre de Lewis (Le), défini par l'équation (1.1) comme étant le ratio de la diffusivité thermique sur la diffusivité massique du réactif déficient du mélange air-carburant. Dans l'équation (1.1), α représente la diffusivité thermique du mélange air-carburant et D_{ij} est la diffusivité massique du réactif déficient i se diffusant vers j (où j peut être soit l'ensemble des autres réactifs du mélange, soit uniquement le N_2 puisqu'il représente plus de 50% de la fraction volumique des autres réactifs). En plus de la non-équidiffusion, un aspect important de l'instabilité thermodiffusive est la courbure du front de la flamme, qui aide à stabiliser la flamme en concentrant (dispersant) la diffusion thermique des bosses (creux) du front de flamme.

$$Le_i = \frac{\alpha}{D_{ij}} \quad (1.1)$$

Le fonctionnement du mécanisme d'instabilité thermodiffusive est schématisé à la Figure 1.6. Dans la zone I, la courbure de flamme fait que la diffusion thermique (flèche pleine) concentre la chaleur de la flamme vers les gaz frais, ce qui les préchauffe et favorise la combustion, tandis que la diffusion massique (flèche pointillée) nuit à la propagation en dispersant les réactifs. Dans la zone II, la courbure de la flamme est responsable d'une diffusion thermique dispersant la chaleur de la flamme dans les gaz frais, ce qui tend à diminuer l'augmentation de la température des gaz frais et causant ainsi un ralentissement de la propagation de la flamme. Pendant ce temps, la diffusion massique concentre les espèces réactives vers le front, ce qui soutient la propagation de la flamme. Si les deux flux de diffusion sont égaux ($Le = 1$), les effets positifs et négatifs s'annulent mutuellement et la propagation demeure constante dans les deux zones. Si la diffusivité thermique est plus grande ($Le > 1$), alors la perte de chaleur dans la zone II est plus grande que l'arrivée de nouveaux réactifs frais et la propagation du front diminue. Au contraire dans la zone I, la diffusion thermique préchauffe suffisamment les gaz frais et favorise la propagation du front. Ceci permet au front de flamme de la zone I de rattraper son retard sur le front de la zone II et ainsi la flamme est stabilisée. Toutefois, si la diffusion massique est la plus grande ($Le < 1$), le gain en espèces réactives dans la zone II surpassera les pertes thermiques, accélérant ainsi la propagation du front. Dans la zone I, la dispersion des réactifs sera trop rapide par rapport au potentiel de préchauffe offert par la diffusion thermique et la propagation du front est réduite. Au final, la bosse et le creux s'amplifieront chacun de leur côté, augmentant le plissement général du front.

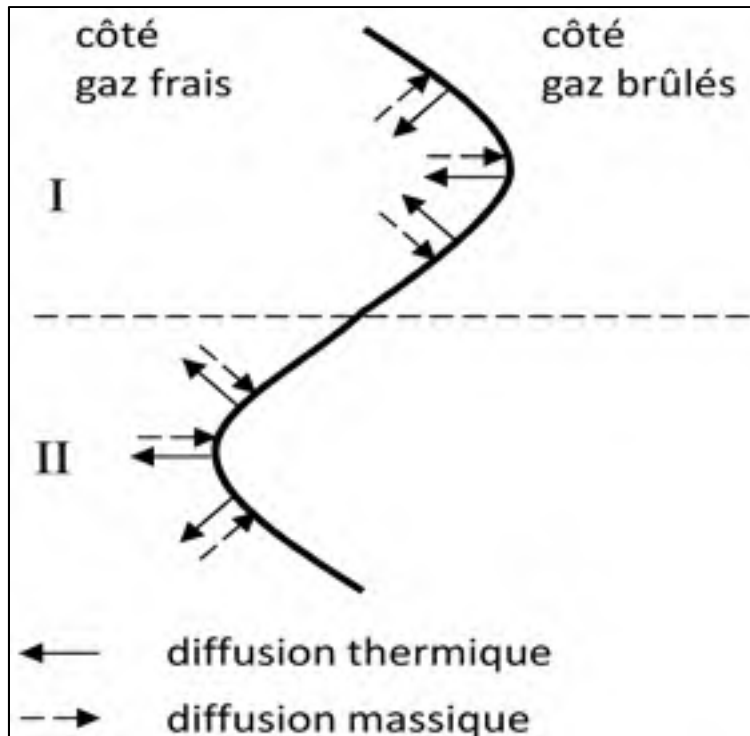


Figure 1.6 Schématisation du mécanisme d'instabilité thermodiffusif (adaptée de Law (2006) et Williams (1985))

En réalité, la transition entre flamme stable et instable ne se fait pas précisément à $Le = 1,00$. Les bosses et les creux sont des courbures dans la flamme. Or, la courbure est autostabilisante puisqu'elle entraîne une augmentation locale de la vitesse dans la zone I et une diminution locale de la vitesse dans la zone II (Law, 2006). Grâce à l'effet stabilisateur de la courbure, des flammes dans lesquelles la diffusivité massique domine légèrement peuvent tout de même être stables. Conséquemment, à cause de la courbure, la flamme ne devient instable que lorsque Le est inférieur à une certaine valeur critique Le^* . La valeur exacte de Le^* est légèrement inférieure à 1 (Addabbo et al., 2002; Vu, Park, Kwon, Bae, Yun et al., 2010) et peut être calculée théoriquement avec les équations présentées soit par Addabbo et al. (2002) ou par Law, Jomaas et Bechtold (2005). Le mécanisme thermodiffusif est l'addition des effets de la non-équidiffusion et de la courbure.

Lorsque le nombre de Lewis est inférieur à la valeur critique Le^* , la flamme est inconditionnellement instable en toutes circonstances à cause des effets thermodiffusifs (Law

et al., 2005). La flamme est alors instable dès son apparition. Lorsque le nombre de Lewis est supérieur à cette valeur critique, le mécanisme thermodiffusif aidera à stabiliser la flamme. Cette dernière demeure toutefois vulnérable à la cellularité générée par les instabilités hydrodynamiques.

1.3.1.3 Instabilité hydrodynamique

Darrieus et Landau ont été les premiers à montrer qu'une flamme pré-mélangée était intrinsèquement instable (Williams, 1985) à cause de phénomènes hydrodynamiques. Le mécanisme hydrodynamique considère qu'une flamme infiniment mince sépare les gaz frais de masse volumique ρ_u et les gaz brûlés de masse volumique ρ_b . Cette brusque variation de la masse volumique subie par les gaz traversant la flamme cause les instabilités hydrodynamiques. Le mécanisme hydrodynamique est schématisé à la Figure 1.7 qui présente un front de flamme perturbé agissant comme discontinuité entre le mélange frais air-carburant à gauche et les gaz brûlés à droite. Au départ, la flamme est parfaitement plane et se propage à vitesse constante S_u^0 . Si ce front de flamme est perturbé (tel qu'illustré sur la Figure 1.7), un tube de courant, dont l'aire (A) est égale loin en amont et en aval de la flamme, doit converger (diverger) à l'approche des segments concaves (convexes) du front de flamme. Afin de maintenir la conservation de la masse et de la quantité de mouvement, l'écoulement dans la section convergente doit accélérer. La vitesse locale des gaz frais (S_u) devient alors supérieure à la vitesse de flamme S_u^0 et le front de flamme est repoussé vers les gaz brûlés. Au contraire, la vitesse des gaz diminue dans la section divergente permettant au front de flamme de s'avancer vers les gaz frais. Ce mécanisme est par conséquent absolument instable. L'intensité de l'instabilité est proportionnelle au ratio d'expansion thermique (σ), défini par $\sigma = \rho_u/\rho_b$: en effet, plus le saut de masse volumique est grand, plus le tube de courant se déforme à l'approche du front de flamme perturbé, ce qui augmente le différentiel entre la vitesse locale des gaz et la vitesse de flamme.

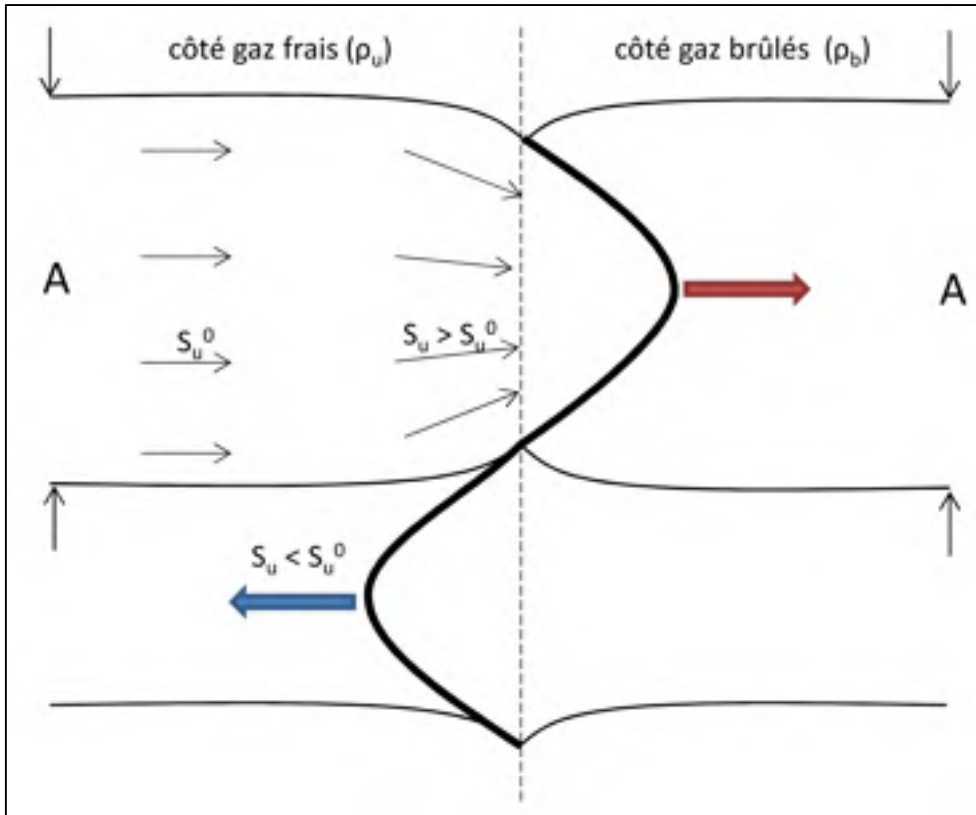


Figure 1.7 Schématisation du mécanisme d'instabilité hydrodynamique (adaptée de Law (2006))

L'instabilité hydrodynamique est aussi liée à l'épaisseur de la flamme (l_f), une dimension caractéristique définie comme étant

$$l_f = (\lambda/C_p)/(\rho_u S_u^0) \quad (1.2)$$

où λ et C_p sont respectivement la conductivité thermique et la capacité thermique massique à pression constante prise à la température moyenne des gaz avant et après combustion (Law et al., 2005). Une réduction de l'épaisseur de flamme favorisera l'instabilité de deux façons (Kwon et al., 2002; Sun, Liu, Bao et Liu, 2012). Premièrement, il y a une diminution de l'influence de la courbure ce qui, tel que mentionné précédemment, facilite la déstabilisation de la flamme. Deuxièmement, la réduction de l'épaisseur de la flamme augmente l'intensité du couple baroclinique, qui dépend du gradient de pression au travers de la flamme. Puisque

ce gradient de pression augmente avec une réduction de l'épaisseur de la flamme, le développement des instabilités hydrodynamiques est favorisé. Comme le montre l'équation (1.2), les carburants plus réactifs, qui ont une vitesse de flamme élevée, ont intrinsèquement une faible épaisseur de flamme. La flamme est aussi plus mince quand la pression est élevée. Un mélange stable à la pression atmosphérique deviendra rapidement instable avec une hausse de la pression.

1.3.2 Observations expérimentales

Les flammes en expansion sphériques sont particulièrement utilisées pour analyser les instabilités du front de flamme puisqu'elles permettent de voir les différentes étapes de la vie de la flamme. Les résultats présentés proviennent donc tous de flammes en expansion sphériques. L'instabilité thermodiffusive apparaît dès les premiers instants de la croissance d'une flamme sphérique pré-mélangée. Cette instabilité se caractérise visuellement par l'apparition de longues fissures sur la surface de la flamme (Liu, Bao, Gu et Chen, 2012). Ces fissures se propageront et se ramifieront dans plusieurs directions tout au long de l'accroissement du rayon de la flamme. L'instabilité hydrodynamique est pour sa part caractérisée par l'apparition soudaine et spontanée d'un grand nombre de cellules de petites dimensions sur la totalité de la surface de la flamme (Liu et al., 2012). Toutefois, les cellules causées par l'instabilité hydrodynamique n'apparaissent qu'après que la flamme ait atteint un certain rayon critique.

Ce délai dans l'apparition des cellules hydrodynamiques est causé par l'étirement positif subi par la flamme en expansion sphérique (Kwon et al., 2002). Or, c'est au début de la propagation de la flamme sphérique, alors que le rayon est faible, que la flamme subit l'étirement le plus important. Cet étirement diminue au fur et à mesure que la flamme se propage et que le rayon augmente. Tant que le rayon de la flamme est inférieur à un certain rayon critique, l'étirement de la flamme empêche la formation des cellules. Toutefois, quand ce rayon critique est atteint et que l'étirement devient trop faible, les cellules apparaissent de façon soudaine et spontanée sur la flamme. Ce rayon critique (R_{cr}) est utilisé pour marquer le

début de la cellularité (Law et al., 2005; Vu et al., 2011a) puisqu'il s'agit d'un évènement soudain, le rendant plus facile à localiser.

Le nombre de Karlovitz, qui représente le facteur d'étirement adimensionnel et qui est défini par $Ka = (2/R)(dR/dt)(s_u^0/l_f)$, est utilisé pour caractériser l'impact de la courbure sur la cellularité, où R est le rayon de la flamme et t est le temps. Bien que les cellules n'apparaissent que lorsque la courbure est suffisamment faible, aucune étude ne porte sur le lien entre le rayon critique et le nombre de Karlovitz, probablement parce qu'un carburant ne peut être caractérisé par un nombre de Karlovitz unique. Des rares études (Kwon et al., 2002; Vu et al., 2011b) présentent des images de flamme de carburants distincts à un même nombre de Karlovitz, isolant ainsi l'effet de la courbure. Ils analysent alors simplement l'aspect visuel des flammes en fonction des paramètres causant les instabilités thermodiffusives et hydrodynamiques (soit Le , σ et l_f).

Une première analyse théorique de la transition vers la cellularité a été réalisée par Bechtold et Matalon (1987). Des améliorations subséquentes (Addabbo et al., 2002; Bradley et Harper, 1994) ont mené à la formulation d'une équation permettant de prédire le moment de la transition, exprimé sous la forme adimensionnelle par le Peclet critique ($Pe_{cr} = R_{cr}/l_f$). Jomaas, Law et Bechtold (2007) ont effectué des mesures expérimentales et trouvé un bon accord avec les résultats théoriques pour le H_2 . Toutefois, ils observent que la théorie surestime le Pe_{cr} du propane (C_3H_8) et sous-estime les Pe_{cr} de l'acétylène (C_2H_2). Les tendances sont par contre correctement modélisées. Law et al. (2005) observent pour leur part un accord modérément bon pour leurs carburants H_2/C_3H_8 pauvres, bien que la théorie surestime les résultats, particulièrement à la plus faible richesse testée, soit $\phi = 0,6$. Pour des carburants H_2/CH_4 , Okafor, Nagano et Kitagawa (2016) trouvent plutôt que la théorie sous-estime les Pe_{cr} expérimentaux. De plus, les Pe_{cr} théoriques atteignent un minimum vers 60% de H_2 pour toutes les pressions étudiées, alors que seuls les résultats expérimentaux à la plus faible pression de 0,10 MPa présentent la même tendance. Au final, cette théorie est en mesure de dégager les tendances générales, mais ne parvient pas à correctement prédire le rayon critique.

1.3.2.1 Dans les carburants purs

La majorité des études cherche plutôt à quantifier et analyser l'impact de la composition et des conditions de combustion sur le moment de l'apparition de la cellularité en mesurant expérimentalement le rayon critique ou le Peclet critique. La transition vers la cellularité a particulièrement été étudiée dans des flammes de H_2 et de C_3H_8 (Hu, Huang, He et Miao, 2009b; Jomaas et al., 2007; Kwon et al., 2002; Sun et al., 2012). Ces deux carburants sont non-équidiffusifs, ce qui veut dire que leur diffusivité thermique n'est pas égale à leur diffusivité massique et donc que leur nombre de Lewis (Le) est différent de 1. Par contre, la variation du Le du H_2 en fonction de la richesse (ϕ) est l'inverse de celle du C_3H_8 . Dans les carburants plus légers que l'air tel que le H_2 , la réduction de ϕ cause une diminution du Le , rendant ainsi le mélange plus sensible aux instabilités thermodiffusives. Au contraire, la réduction de ϕ augmente Le dans les carburants plus lourds que l'air tel que le C_3H_8 , menant à une hausse de la stabilité. Pendant ce temps, l'épaisseur de flamme et le ratio d'expansion thermique évoluent en suivant une forme parabolique avec pour effet que les instabilités hydrodynamiques culminent à $\phi \sim 1,1$. Il y a donc, dans certaines conditions de mélange, une compétition entre ces deux types d'instabilités. Par exemple, une flamme d'hydrogène passant de $\phi = 0,8$ à $\phi = 1,1$ voit son instabilité de nature hydrodynamique augmenter tandis que son instabilité de nature thermodiffusive décroît.

Puisque Le est insensible aux variations de pression (Sun et al., 2012), une façon simple d'étudier uniquement l'impact du mécanisme hydrodynamique est de changer la pression. L'augmentation de la pression n'affecte pas grandement le ratio d'expansion thermique puisque la température de flamme n'est que faiblement sensible à la variation de la pression (Law et al., 2005). Par contre, l'augmentation de la pression diminue l'épaisseur de flamme de façon importante. Une augmentation de la pression accroît donc les instabilités hydrodynamiques et la cellularité à cause d'un amincissement de l'épaisseur de la flamme. Le nombre de Peclet critique demeure cependant pratiquement constant (Sun et al., 2012). Finalement, Liu et al. (2012) notent que la déstabilisation des flammes très pauvres ($\phi = 0,2$ et $0,4$) survient à peine plus rapidement lorsque la pression est augmentée.

L'augmentation de la température initiale décroît σ et augmente l_f , ce qui défavorise le mécanisme hydrodynamique. Le nombre de Lewis n'est pour sa part pas affecté par des variations sur la température initiale. L'augmentation de R_{cr} liée à la hausse de la température est cependant faible (Liu et al., 2012; Sun et al., 2012) et certains auteurs considèrent même que la température initiale n'a aucun effet sur la cellularité (Hu, Huang, He, Zheng et Miao, 2009c).

Sun et al. (2012) démontrent que la flamme d'hydrogène pur devient plus stable (augmentation du R_{cr}) avec un accroissement de la richesse. L'augmentation de la richesse augmente tout d'abord Le , réduisant d'autant les instabilités thermodiffusives. L'augmentation de la richesse entraîne également la variation de σ et de l_f . En augmentant la richesse de 0,6 à 1,0, σ s'accroît rapidement tandis que l_f diminue notablement. Ces deux effets combinés augmentent grandement l'instabilité hydrodynamique de la flamme. En augmentant la richesse de 1,0 à 1,6, σ se met à diminuer rapidement tandis que l_f continue de décroître. Sun et al. (2012) concluent alors à une légère diminution des instabilités hydrodynamiques en affirmant que σ est le paramètre dominant. En continuant d'augmenter la richesse de 1,6 à 2,5, σ continue de décroître tandis que l_f commence à croître légèrement, réduisant encore les instabilités hydrodynamiques. Puisque la diminution de la cellularité dans les mélanges riches se fait de pair avec un accroissement de la stabilité hydrodynamique, conjugué au fait que $Le > 1$ dans les mélanges riches, alors la cellularité dans les mélanges riches n'est gouvernée que par les instabilités hydrodynamiques (Sun et al., 2012). Par contre, pour les mélanges pauvres, un accroissement de la richesse mène à une compétition entre la diminution des instabilités thermodiffusives et l'augmentation des instabilités hydrodynamiques. Puisque le rayon critique et donc la stabilité augmente, alors la cellularité dans les mélanges pauvres est principalement gouvernée par les variations dans les instabilités thermodiffusives (Hu et al., 2009b; Sun et al., 2012).

Afin d'éviter cette compétition entre les deux mécanismes d'instabilité, Jomaas et al. (2007) ont effectué une série d'expériences sur l'acétylène (C_2H_2) pour des richesses allant de 0,6 à 2,0. En plus d'être un carburant pratiquement équidiffusif (c'est-à-dire dont $Le \sim 1$), son Le

varie très peu en fonction de φ puisque la masse molaire de l'acétylène est très proche de celle de l'air. Ils observent que R_{cr} varie significativement en fonction de φ et qu'il atteint un minimum près de $\varphi = 1,2$, là où l_f et σ maximisent les instabilités hydrodynamiques en atteignant leur minimum et maximum respectif. Toutefois, Pe_{cr} est limité à une étroite fourchette de valeur pour toute la plage de φ . L'absence d'une variation significative de Pe_{cr} en fonction de φ indique que la cellularité est peu sensible à l'effet de σ . Le Pe_{cr} est donc indépendant du mécanisme hydrodynamique. Par contre, les Pe_{cr} des flammes de H_2 et de C_3H_8 varient de la même manière que leur R_{cr} , et donc Pe_{cr} est dépendant du mécanisme thermodiffusif.

Toutefois, le Le de la majorité des hydrocarbures, notamment le propane, décroît en fonction de la richesse, menant à des flammes plus stables dans des mélanges pauvres. De façon générale, augmenter la richesse a un effet stabilisant sur les carburants légers et un effet déstabilisant sur les carburants lourds (Addabbo et al., 2002). Les carburants lourds sont définis comme étant les carburants dont la masse molaire est plus élevée que celle de l'oxygène (Law et al., 2005).

1.3.2.2 Dans les carburants comprenant plusieurs combustibles

Ce comportement opposé du H_2 et des hydrocarbures a incité les chercheurs à s'intéresser à la cellularité dans des carburants comprenant plusieurs combustibles, ce que Jomaas et al. (2007) n'ont malheureusement pas fait. L'ajout de propane (C_3H_8) à une flamme de H_2 a particulièrement été étudié, mais des études s'attardent aussi à l'effet du butane (C_4H_{10}) et du CH_4 . Un ajout de C_3H_8 ou de C_4H_{10} permet d'augmenter le rayon critique et donc de réduire la cellularité. Pour les mélanges pauvres contenant soit du C_3H_8 ou du C_4H_{10} , cette réduction s'opère via un accroissement de Le . Toutefois, la cellularité demeure réprimée par l'ajout de C_3H_8 ou de C_4H_{10} dans les mélanges riches malgré le fait qu'ils causent une diminution du Le (Vu, Park, Kwon et Kim, 2009). Il est vrai que dans un carburant à base d' H_2 , le Le des mélanges riches est plus élevé que celui des mélanges pauvres, mais cet avantage s'amenuise grandement lors de l'ajout de C_3H_8 ou de C_4H_{10} . Ces carburants étant plus lourds que

l'oxygène, en ajouter dans du H_2 cause une réduction du Le dès $\varphi = 1,2$ (Vu et al., 2011a). Mais même si Le décroît, les mélanges riches demeurent tout de même stables parce que l'ajout d'hydrocarbures épaissit la flamme, ce qui réduit les instabilités hydrodynamiques. On peut donc dire que l'effet du gain en épaisseur de flamme est supérieur à celui de la diminution de Le , ce qui revient à affirmer que le mécanisme hydrodynamique l'emporte sur le mécanisme thermodiffusif. Toutefois, une telle affirmation serait contraire aux observations de Hu et al. (2009b) et de Sun et al. (2012) mentionnées plus haut et qui montraient que les instabilités thermodiffusives contrôlent la stabilité des mélanges H_2 /air. Conséquemment, les observations de Vu et al. (2011a; 2010; 2009) semblent plutôt confirmer l'hypothèse de Law et al. (2005) selon laquelle le H_2 domine les mécanismes d'instabilité. Selon cette hypothèse, la flamme a des caractéristiques de combustion plus près de celles de l'hydrogène pur à cause de la plus grande mobilité des atomes d'hydrogène (Law et al., 2005). L'ajout de propane à une flamme d'hydrogène rend donc la flamme plus stable autant dans les mélanges pauvres que dans les mélanges riches.

Hu et al. (2009c) ont étudié la cellularité dans les carburants H_2/CH_4 à une richesse de 0,8. Aucune cellule n'a été observée dans le CH_4 pur. La flamme est par contre déstabilisée par l'ajout de H_2 , le R_{cr} diminuant exponentiellement avec l'accroissement de la concentration en H_2 . La diminution de R_{cr} résulte d'une action conjointe des deux mécanismes d'instabilité. En effet, l'ajout de H_2 favorise les instabilités thermodiffusive et hydrodynamique en causant une diminution de Le et de l_f respectivement. Une étude similaire a été menée par Okafor et al. (2016). Ces derniers caractérisent l'apparition des cellules par le Peclet critique. À une pression de 0,10 MPa, ils notent que Pe_{cr} décroît initialement avec l'ajout de H_2 , mais atteint un minimum vers 60% H_2 avant d'augmenter. Ils attribuent ce comportement à l'effet du Le , qui dans leur étude atteint aussi un minimum vers 60% H_2 . Cette inversion est corroborée par des calculs utilisant la théorie de Addabbo et al. (2002). Toutefois, l'inversion du Pe_{cr} n'est pas observée à 0,25 MPa bien que le comportement de Le n'ait pas été changé par la hausse de pression et bien qu'elle soit prédite par la théorie. Une telle inversion du Pe_{cr} est aussi observée par Hu et al. (2009c) à 0,5 MPa, mais n'est pas observée à 0,75 MPa. De plus, contrairement à Okafor et al. (2016), Hu et al. (2009c) observent, en utilisant une méthode de

calcul différente, que Le diminue constamment avec l'ajout de H_2 . Des études complémentaires sont donc requises pour comprendre l'impact du CH_4 et l'interprétation du Pe_{cr} . De plus, ces deux études montrent qu'il existe différentes méthodes pour calculer le nombre de Lewis des carburants comprenant plusieurs combustibles et que leurs résultats peuvent être contradictoires.

La stabilité dans les carburants H_2/CO n'a été étudiée que par le groupe de Vu *et al.* Ils démontrent (Vu et al., 2011a) que l'ajout de 20% de méthane dans un carburant équimolaire H_2/CO cause une augmentation de l'épaisseur de la flamme (+24%) et une légère diminution du Le (-3%). Les auteurs qualifient toutefois la hausse de la stabilité hydrodynamique (occasionnée par la hausse de l_f) de faible et indiquent qu'elle est équilibrée par la faible hausse des instabilités thermodiffusives. Conséquemment, le méthane n'augmente que légèrement le rayon critique des carburants H_2/CO . Malgré la hausse du R_{cr} , les auteurs concluent, en regardant les images des flammes, que le comportement de la flamme avec méthane est similaire au comportement de la flamme sans méthane.

Leur étude de l'impact d'un ajout de CO dans des carburants complexes de $H_2/CO/CH_4/CO_2/N_2$ permet de remarquer une très faible augmentation du Le pouvant mener à une diminution des instabilités thermodiffusives (Vu et al., 2011b). Inversement, les instabilités hydrodynamiques sont légèrement favorisées par une faible diminution de l_f et une faible augmentation de σ . Au final, l'ajout de CO semble n'avoir aucun effet sur la stabilité de la flamme. Par contre, le rayon critique n'a pas été mesuré dans cette étude et ces flammes en expansion sphérique n'ont fait l'objet que d'une analyse visuelle. L'effet du CO a donc seulement été étudié qualitativement, et dans des carburants complexes où la concentration de plusieurs autres combustibles varie également.

1.3.2.3 Effet des diluants

Vu et al. (2010) ont également étudié l'impact des diluants, nommément le CO_2 , l'azote (N_2) et l'hélium (He) sur la cellularité d'une flamme équimolaire H_2/CO . Leurs résultats montrent

que ces trois diluants permettent d'augmenter le rayon critique du carburant. L'effet du CO_2 et du N_2 est cependant faible, quoique ce dernier soit légèrement plus efficace. Un ajout de ces deux diluants cause une augmentation de l'épaisseur de flamme et une réduction du ratio d'expansion thermique, diminuant ainsi les instabilités hydrodynamiques. Par contre, Le est aussi diminué, causant une augmentation des instabilités thermodiffusives. L'effet net selon les auteurs est donc négligeable. D'ailleurs, les auteurs n'observent pas de différence visuelle entre les flammes avec et sans dilution et concluent, malgré l'augmentation de R_{cr} , que le CO_2 et le N_2 ne peuvent supprimer la cellularité. L'hélium est beaucoup plus efficace pour réduire la cellularité parce que, contrairement aux deux autres, il cause une augmentation du Le en plus de la hausse de l_f et de la diminution de σ . L'hélium diminue donc les instabilités thermodiffusives et hydrodynamiques. L'augmentation du R_{cr} est d'ailleurs accompagnée par une diminution visuelle de la cellularité.

1.3.3 Les conséquences de la cellularité

Les mécanismes d'instabilité mènent donc à l'apparition de cellules sur le front de flamme ce qui augmente l'aire de la flamme. Grâce à cette surface additionnelle, plus de carburant est brûlé, ce qui augmente la vitesse de flamme. Les conditions nécessaires étant en place pour l'apparition de cellules, de nouvelles cellules apparaissent et se multiplient tout au long de la propagation de la flamme (Okafor et al., 2016). Les perturbations croissent aussi longtemps que la flamme se propage, causant une augmentation continue de la vitesse de flamme. Il s'agit ici d'un phénomène d'autoaccélération (Kwon et al., 2002; Law et Kwon, 2004; Okafor et al., 2016) puisque la vitesse augmente par des mécanismes intrinsèques à la flamme et en l'absence de changement dans l'écoulement. L'autoaccélération peut être caractérisée par un coefficient d'autoaccélération β défini par la relation $R \propto t^\beta$. Théoriquement, la flamme devient autoturbulente lorsque $\beta = 1,5$ (Xie, Wang, Cai et Huang, 2016; Yang et al., 2016). Des mesures effectuées sur des flammes de H_2 (Jomaas, 2008; Kwon et al., 2002; Law et Kwon, 2004), d'acétylène et d'éthylène (Jomaas, 2008) et de H_2/CH_4 (Okafor et al., 2016) montrent pour l'instant que β ne dépasse pas 1,33. L'autoaccélération causée par l'apparition de cellules ne mène donc pas à l'autoturbulence.

Cependant, le nombre de mesures demeure limité. De plus, l'impact relatif à chacun des mécanismes d'instabilité n'a pas fait l'objet d'études.

1.4 Problématique

La revue de littérature illustre bien le grand impact que les conditions dans lesquelles la combustion se déroule ont sur la vitesse laminaire et sur la stabilité de la flamme. Afin de maximiser le rendement de la combustion, il est nécessaire que les systèmes de combustion soient conçus pour optimiser chaque situation spécifique.

Néanmoins, la revue de littérature montre qu'il existe une grande disparité dans les résultats expérimentaux de S_u^0 , surtout près de la vitesse maximale ou lorsque la température dépasse 500 K. De plus, peu de données expérimentales sont disponibles pour caractériser l'impact de la concentration en CO_2 , qui atteint pourtant des niveaux non négligeables dans le syngas (voir Figure 1.3). Le nombre d'articles étudiant l'impact du CH_4 sur la vitesse laminaire de flamme du syngas est encore plus faible, même si le syngas est souvent brûlé conjointement avec du CH_4 (Molière, 2002). Des cinétiques chimiques ont été créées pour prédire les vitesses de flamme, mais en l'absence d'un consensus sur les vitesses réellement atteintes par la flamme, leurs résultats demeurent sujets à caution. Afin d'aider les cinéticiens à améliorer leurs cinétiques, il est nécessaire d'identifier à quel moment les cinétiques commencent à diverger des résultats expérimentaux en acquérant de nouvelles données à des pas de richesses et de températures plus petits. De plus, la littérature montre que les vitesses de flamme atteintes par le syngas varient énormément en fonction de la composition du carburant et de la richesse. Il est donc très difficile de prédire, *a priori*, quelle sera la vitesse de flamme d'un carburant spécifique à une condition donnée sans recourir à des calculs de cinétique chimique, ce qui requiert du temps et des outils informatiques. Il est néanmoins utile de connaître la vitesse de flamme laminaire d'un carburant avant de commencer la conception, car elle influence le choix des injecteurs et dicte les caractéristiques de l'écoulement dans la chambre à combustion.

Toutefois, de meilleures capacités de prédiction de S_u^0 ne sont utiles que si la flamme demeure laminaire. Or, la littérature montre que dans certaines situations, des instabilités de nature cellulaire se développent sur le front de flamme lorsque celui-ci dépasse son rayon critique. Le front ne peut alors rester dans le régime laminaire et la vitesse de flamme augmente. Il est nécessaire pour la conception des chambres à combustion de savoir dans quelles conditions ces instabilités se développent, la distance que peut franchir la flamme avant de devenir instable et quelle augmentation de vitesse est générée par ces instabilités afin d'adapter la conception prévue pour une combustion laminaire.

Les études théoriques ou expérimentales sur la cellularité mentionnent toutes que le nombre de Lewis est un facteur déterminant pour distinguer un front de flamme stable d'un front instable. En effet, un Le inférieur à la valeur critique Le^* implique que la flamme sera instable dès le départ. Au contraire, la flamme gagne en stabilité quand $Le > Le^*$. Le calcul du Le est clair et direct pour un mélange air-carburant contenant un combustible unique. Toutefois, le calcul se complexifie dans un carburant comprenant plusieurs combustibles puisque les propriétés de diffusion de chacun des combustibles doivent être prises en compte. Il n'y a présentement pas de consensus sur la façon de procéder. Trois règles de mélange coexistent dans la littérature afin de calculer le nombre de Lewis d'un carburant comprenant plusieurs combustibles (Bouvet, Halter, Chauveau et Yoon, 2013). Addabbo et al. (2002) recommandent en plus de coupler le Le du carburant à celui de l'oxygène. Finalement, certains auteurs utilisent la diffusion massique binaire (avec N_2 comme espèce dominante), tandis que d'autres favorisent la diffusion multiespèces.

Bouvet et al. (2013) ont réalisé une étude expérimentale afin de déterminer la meilleure approche à utiliser sur des mélanges pauvres (richesses de 0,6 et 0,8) de H_2/CO , H_2/CH_4 , H_2/C_3H_8 , et H_2/C_8H_{18} . Toutefois, ils ont identifié une règle de mélange qualitativement précise uniquement pour les carburants H_2 /alcane. De plus, ils rejettent la méthode de couplage O_2 -carburant qui a été développée plus particulièrement pour les mélanges près de la stœchiométrie même s'ils n'ont pas étudié cette plage de richesse. Finalement, ils utilisaient la diffusion massique binaire, qui est probablement moins précise pour les

carburants contenant du H_2 et/ou du CO puisque ceux-ci possèdent des ratios volumiques air/carburant plus faibles que les hydrocarbures, ce qui rend la concentration en N_2 est moins dominante.

Bref, comme le syngas est un carburant comprenant plusieurs combustibles, la bonne méthodologie de calcul pour déterminer Le doit être identifiée avant de procéder à l'étude sur la cellularité. Cette méthodologie permettra d'analyser correctement l'impact du Le sur R_{cr} lorsque la composition du carburant change.

Bien qu'il existe un certain nombre d'études ayant rapporté des valeurs de R_{cr} pour un ensemble de conditions expérimentales, la revue de littérature montre que des travaux complémentaires sont nécessaires afin de bien comprendre le phénomène. En effet, la littérature ne rapporte pas de méthode empirique permettant de prédire à quel moment les cellules feront leur apparition. Il existe bien une méthode théorique (Addabbo et al., 2002; Bradley et Harper, 1994; Bradley, 1999), mais les quelques études comparant les prédictions aux résultats expérimentaux ont montré que la théorie surestime généralement les résultats.

Les rares études sur la stabilité des carburants H_2/CO /(diluants ou CH_4) sont pour la plupart issues du même groupe de recherche. Elles concluent, sur la base d'observations qualitatives et sans préciser leurs critères, que l'ajout de CO_2 ou de CH_4 a peu d'effet sur la stabilité. Pourtant, le critère quantitatif bien défini, le rayon critique, augmente, indiquant ainsi une hausse de la stabilité. De plus, les résultats de certaines études montrent que l'apparition de la cellularité pouvait être retardée (hausse du rayon critique) même si l'évolution de l'épaisseur de flamme et du ratio d'expansion thermique va dans le sens d'une augmentation des instabilités hydrodynamiques. Cependant, puisque le nombre de Lewis augmentait, ces auteurs concluent que les instabilités thermodiffusives et hydrodynamiques sont en *compétition* (Sun et al., 2012; Tang, Huang, Wang et Zheng, 2009; Vu et al., 2011a) et que la stabilité augmente quand la hausse des instabilités hydrodynamiques est plus faible que la baisse des instabilités thermodiffusives. Malheureusement, dans ce type d'analyse, les auteurs ne font que comparer les images de différents carburants à un rayon donné, et ils ne

mentionnent pas le R_{cr} de leurs carburants. De nouvelles mesures de R_{cr} sont nécessaires afin d'augmenter notre compréhension du rôle de Le et l_f sur l'apparition de cellules. Ces mesures permettront aussi de quantifier l'intensité de l'autoaccélération des flammes et d'étudier le rôle de chacun des mécanismes d'instabilité sur l'autoaccélération.

1.5 Objectifs de recherche

Ce projet propose d'étudier la combustion du syngas dans plusieurs conditions initiales afin de caractériser leurs effets sur la vitesse laminaire de flamme et la stabilité du front de flamme. De plus, il est proposé de développer des outils prédictifs simples, sous la forme de corrélations. Ces corrélations permettront de donner rapidement une idée générale des caractéristiques de la flamme et de la combustion et ainsi de diminuer les besoins en simulations numériques en orientant les concepteurs vers une solution. L'objectif principal du projet est donc de:

- Caractériser l'impact de la composition du syngas sur la vitesse laminaire de flamme et sur l'apparition des instabilités cellulaires.

Plus spécifiquement, l'objectif sera accompli grâce à la réalisation des objectifs secondaires suivants :

1. Mesurer les vitesses laminaires de flamme en fonction de la composition, de la richesse et de la température;
2. Valider les cinétiques chimiques couramment utilisées pour prédire S_u^0 ;
3. Développer une corrélation prédisant le comportement de S_u^0 à partir des résultats expérimentaux obtenus au sous-objectif 1;

4. Développer une méthodologie empirique permettant de calculer le nombre de Lewis d'un carburant comprenant plusieurs combustibles;
5. Identifier, en fonction de la composition et des propriétés des carburants, le rayon critique au-delà duquel la théorie laminaire de la flamme ne s'applique plus, rendant caducs les résultats des prédictions obtenus par la corrélation du sous-objectif 3 et par les cinétiques validées au sous-objectif 2;
6. Développer une corrélation prédisant le rayon critique de la flamme laminaire.

Afin de réaliser ces objectifs, ce projet a été divisé en trois parties. La première partie concerne la vitesse de flamme et vise à accomplir les sous-objectifs 1, 2 et 3. La méthodologie expérimentale permettant de réaliser les sous-objectifs de cette partie est présentée à la section 2.1.1. Les résultats sont quant à eux présentés au CHAPITRE 3. La deuxième partie concerne le nombre de Lewis et vise à accomplir le sous-objectif 4. La méthode expérimentale est présentée à la section 2.1.2 et les résultats au CHAPITRE 4. La troisième partie concerne les instabilités de flamme et vise à accomplir les sous-objectifs 5 et 6. La méthode expérimentale est similaire à celle requise pour la deuxième partie et est donc aussi présentée à la section 2.1.2. Les résultats sont présentés au CHAPITRE 5. Ils permettront, en utilisant les résultats de la deuxième partie, de déterminer le rayon critique au-delà duquel les résultats de la première partie ne sont plus applicables.

CHAPITRE 2

MONTAGES ET MÉTHODOLOGIES

Afin d'atteindre les objectifs de cette thèse, plusieurs résultats expérimentaux sont nécessaires. Ce chapitre présente les moyens mis en œuvre afin d'obtenir ces résultats. La première section décrit en détail les deux montages expérimentaux, de même que les méthodes d'acquisition et de traitement des données qui ont été utilisées pour atteindre les objectifs de la recherche. La deuxième section introduit la méthode utilisée pour calculer les incertitudes expérimentales liées à ces montages. Enfin, quelques calculs et analyses requièrent de connaître la valeur de certaines propriétés de la flamme. Ces propriétés sont calculées avec un logiciel présenté à la section 2.3.

2.1 Description des montages expérimentaux

Toutes les expériences commencent par la préparation du carburant à étudier. Les compositions des carburants changent en fonction de l'objectif à atteindre et elles sont donc présentées dans leur chapitre respectif. Les carburants seront composés d'au maximum quatre combustibles. Chacun de ces quatre combustibles (pureté : H_2 – 99,999%, CO – 99,5%, CO_2 – 99,9%, CH_4 – 99,9%) ainsi que l'air sont entreposés séparément dans des bouteilles sous pression. Un programme LabView contrôle le débit de chacun des combustibles afin de créer le carburant désiré. Les débits sont régulés par des débitmètres massiques (Omega série FMA5400) ayant une précision de 1,5% de la pleine échelle et une répétabilité de 0,5%. Tous les combustibles se rejoignent ensuite dans une conduite unique (d'une longueur supérieure à 50 fois le diamètre (Bouvet et al., 2011a)) où ils se mélangent tout en se dirigeant vers le brûleur Bunsen ou la bombe à combustion. Notons que, sauf indications contraires, tous les essais sont menés à la température ambiante du laboratoire, qui est évaluée à 295K.

2.1.1 Brûleur Bunsen

Dans les études mentionnées au CHAPITRE 1, les mesures de vitesses de flamme ont été effectuées en utilisant plusieurs types de montages. Les deux approches expérimentales les plus utilisées sont celles de la flamme en expansion sphérique (McLean et al., 1994; Prathap et al., 2012; Sun et al., 2007) et du brûleur Bunsen (Bouvet et al., 2011a; Dong et al., 2009; Natarajan et al., 2007). La flamme de stagnation a aussi été utilisée, mais moins fréquemment (Kishore et al., 2011). La comparaison des résultats publiés dans la littérature montre qu'ils sont indépendants de la méthode.

Le brûleur Bunsen jumelé à la méthode de chimiluminescence a donc été choisi pour atteindre les sous-objectifs 1, 2 et 3. Le montage est illustré à la Figure 2.1. Des brûleurs ayant des diamètres de 4 et 6 millimètres sont utilisés pour ces expériences. Le diamètre est choisi afin de s'assurer que l'écoulement soit laminaire à la sortie du brûleur. Les essais réalisés à l'aide du brûleur Bunsen sont effectués à la pression atmosphérique ($P = 1 \text{ atm}$).

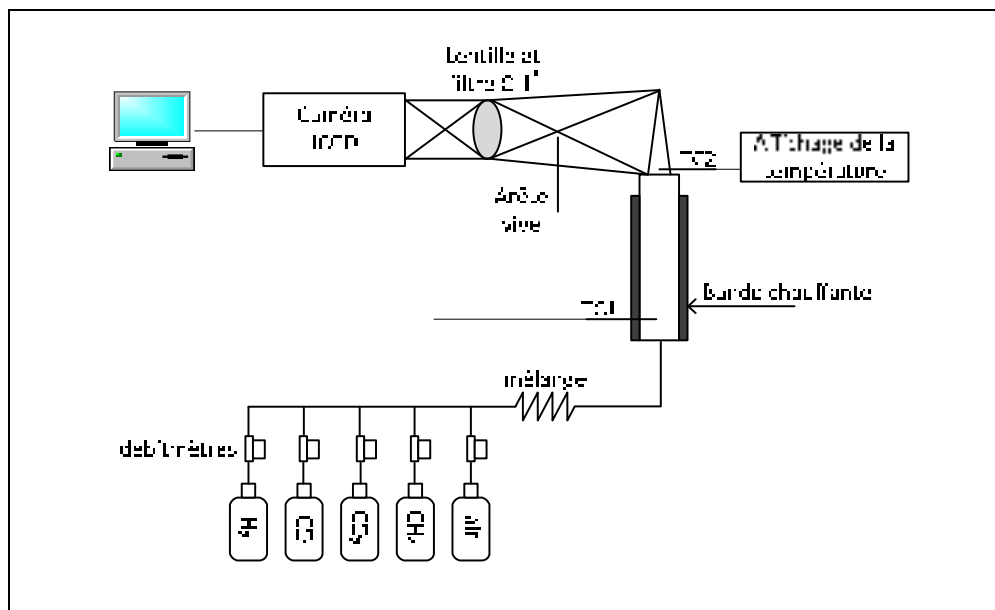


Figure 2.1 Schéma du montage pour l'expérience sur la vitesse de flamme

Des images de la flamme, au moyen de la chimiluminescence du radical OH^* , sont prise par une caméra à dispositif à transfert de charge (modèle Imager Intense de LaVision; 1376 x 1040 pixels) équipée d'un intensificateur de charge (modèle Intensified Relay Optics de LaVision) et d'une lentille UV f/4,5 105mm. Un filtre passe-bande d'une longueur d'onde de 310 nm (Omega Optical 310PB10) est posé sur la lentille afin de permettre la visualisation des radicaux OH^* . La caméra est contrôlée à l'aide du logiciel DaVis (Version 7).

L'intensité de la luminosité des radicaux OH^* diminue toutefois avec la hauteur de la flamme, rendant le sommet de la flamme moins lumineux que la base (Natarajan et al., 2007). L'utilisation d'une arête vive («knife edge») placée au foyer de la lentille entre la caméra et le brûleur permet d'équilibrer l'intensité de la luminosité sur toute la hauteur. Cet élément est cependant retiré lorsque les mélanges testés ont une richesse élevée ($\phi \sim 1,5$) puisque l'intensité de la luminosité des mélanges riches est mieux répartie sur toute la hauteur de la flamme (Law, 2006). Deux cents images instantanées sont acquises (10 images par seconde) puis moyennées par le logiciel DaVis (Version 7) afin d'obtenir l'image finale. Une telle image est présentée à la Figure 2.2A. Comme mentionné à la section 1.3, les carburants contenant de l'hydrogène favorisent la formation rapide d'instabilité cellulaire. Cependant, les flammes des syngas étudiés ici sont libres de cellularité, pareillement à d'autres flammes de syngas mesurées à 1 atm dans des flammes en expansion sphériques (Bouvet, Chauveau, Gökalp et Halter, 2011b; Sun et al., 2007) ou sur des brûleurs Bunsen (Bouvet et al., 2011a; Dong et al., 2009; Natarajan et al., 2007).

En prenant comme hypothèse que la vitesse est la même pour toute la surface de la flamme, la vitesse de flamme est calculée en appliquant la loi de la conservation de la masse :

$$\dot{m} = \rho_u S_u A = \rho_u Q \Rightarrow S_u = \frac{Q}{A} \quad (2.1)$$

où ρ_u est la masse volumique des gaz frais, S_u est la vitesse locale des gaz frais, $\dot{m}$ et Q sont respectivement les débits massique et volumique des gaz frais passant par le brûleur et A est l'aire de la surface latérale du cône de flamme.

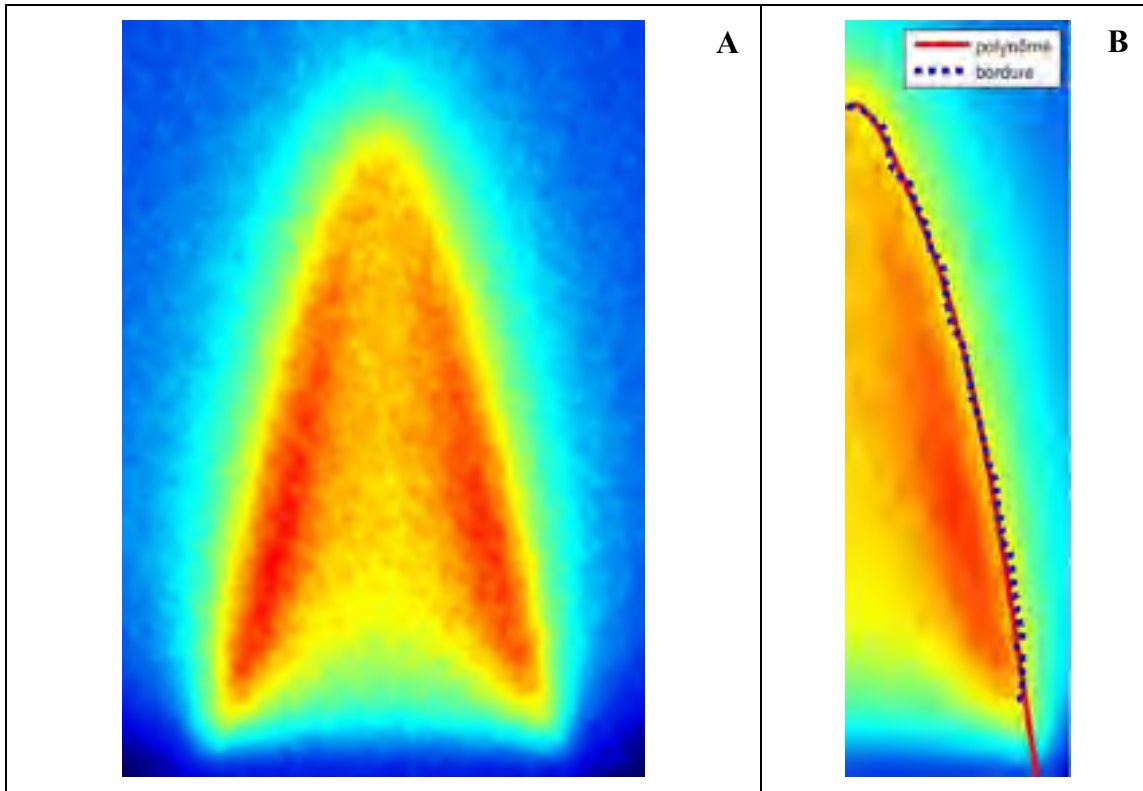


Figure 2.2 Images de la chimiluminescence OH^* d'une flamme 50/50 H_2/CO à $\varphi = 1,6$. A: image complète; B: polynôme (rouge continu) représentant la bordure du maximum d'intensité (bleu pointillé)

L'aire de la surface latérale du cône de flamme, qui est défini comme étant la région où l'intensité est supérieure à 99% de la valeur de l'intensité maximale de OH^* , est calculée à l'aide d'un code maison développé dans MATLAB. Puisque le cône est considéré être symétrique autour de l'axe du brûleur, il est divisé en deux moitiés. Le code détecte la bordure de l'une des moitiés du cône de la flamme et y fait correspondre un polynôme de degré 5 (Natarajan et al., 2005). Le programme intègre alors ce polynôme autour de l'axe de symétrie ce qui donne l'aire latérale du cône. Cette procédure est illustrée à la Figure 2.2B. La procédure est répétée sur l'autre moitié du cône. La moyenne des aires calculées sur chacune des deux moitiés est utilisée dans l'équation (2.1) pour déterminer la vitesse de flamme.

Notons que cette méthode ne permet pas de retirer l'étirement subi par la flamme. Cet étirement caractérise la sensibilité de la flamme envers le mouvement de la flamme ($\dot{R}$), la

courbure et les contraintes et il doit être retiré pour avoir la vitesse réelle S_u^0 . Toutefois, il a été démontré (Natarajan et al., 2007) que l'utilisation du cône visible (chimiluminescence) donnait une vitesse locale S_u s'approchant fortement de la vitesse de flamme non-étirée S_u^0 . En effet, Sun, Sung, He et Law (1999b) ont remarqué que pour les flammes fixes telles que flamme Bunsen ($\dot{R} = 0$), la vitesse mesurée grâce au cône visible n'est affectée que par les contraintes. Ces contraintes forcent le sommet du cône à s'arrondir (voir Figure 2.2B) plutôt que de continuer en ligne droite (Natarajan et al., 2007). L'effet des contraintes peut être minimisé en prenant une flamme assez haute de façon à ce que la proportion de la flamme affectée par le sommet soit petite. Ces contraintes se manifestent aussi sous la forme d'une tension induite sur la surface latérale du cône de flamme à cause de l'écoulement du gaz à l'intérieur du cône. Durant la présente campagne de mesures, on s'assure que la hauteur de la flamme mesure entre deux à trois fois le diamètre du brûleur. Ce critère permet d'éviter les flammes trop courtes, qui subissent un plus fort taux de pertes de chaleur au brûleur et des contraintes au sommet, et les flammes trop hautes, qui subissent un étirement latéral (tension) plus important (Bouvet et al., 2011a).

Cette thèse vise aussi à étudier l'effet de la température initiale sur S_u . Afin d'effectuer des mesures à des températures supérieures à la température ambiante (qui est évaluée à 295K), une gaine chauffante est posée sur la conduite et sur le brûleur. Deux thermocouples de type K sont installés pour mesurer la température. Le premier se situe tout juste au-dessus du centre du brûleur afin de mesurer la température des gaz. Le deuxième est installé à la base du brûleur et est relié à un contrôleur qui maintient la température de la surface du brûleur constante. Le premier thermocouple est retiré avant d'allumer la flamme. Cette configuration permet d'avoir une température stable (variation de $T^\circ \sim 5$ K dans le temps) à la sortie du brûleur.

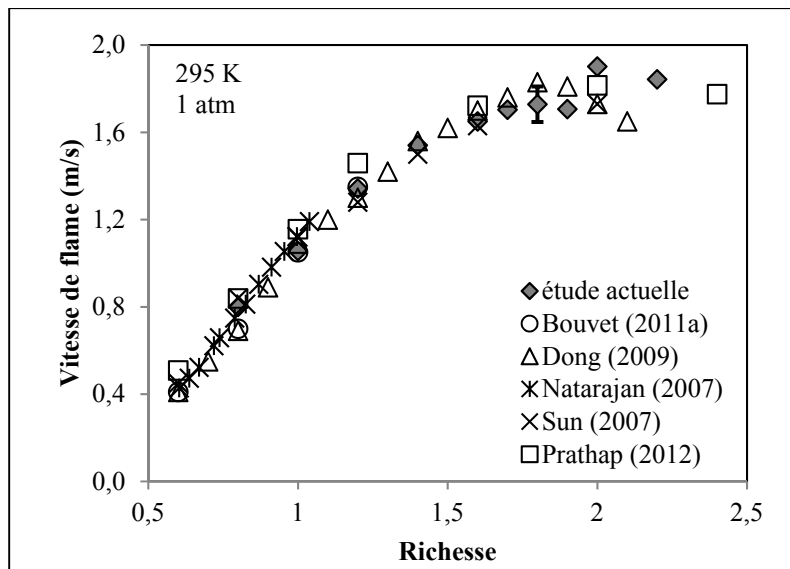


Figure 2.3 Vitesses de flamme (50/50 H₂/CO) mesurées dans cette étude comparées à certains résultats publiés dans la littérature

Des mesures expérimentales ont d'abord été effectuées sur un carburant 50/50 H₂/CO à différentes richesses afin de valider la procédure expérimentale et la procédure de post-traitement. Les vitesses mesurées sont comparées à celles publiées dans la littérature, qui ont été obtenues soit avec brûleur Bunsen (Bouvet et al., 2011a; Dong et al., 2009; Natarajan et al., 2007), soit avec une flamme en expansion sphérique (Prathap et al., 2012; Sun et al., 2007). La Figure 2.3 montre que les vitesses mesurées sont similaires à celles de la littérature, avec un écart maximal de 10%, validant ainsi la procédure.

2.1.2 Bombe à combustion

Le brûleur Bunsen ne permet cependant pas de déterminer la sensibilité à l'éirement de la flamme ni de faire des mesures à haute pression. La méthode de la flamme en expansion sphérique a donc été retenue pour atteindre les objectifs 4, 5 et 6. La flamme prend son expansion lorsque les gaz pré-mélangés contenus dans une enceinte sont allumés au centre de celle-ci. Cette enceinte est généralement sphérique afin d'épouser la forme naturelle de la flamme. Le laboratoire TFT de l'ÉTS possède toutefois une bombe cylindrique de 300 mm de diamètre et de 330 mm de longueur, pour un volume interne total de 10,78 litres. Dans ce

type de bombe, le champ d'écoulement est éventuellement perturbé par les parois. Conséquemment, le critère $R < 0,3R_c$ (Burke, Qin, Ju et Dryer, 2007), où R_c est le rayon interne de la chambre, doit être respecté afin de s'assurer que la flamme garde son caractère sphérique. Pour la bombe de l'ÉTS, les résultats sont valides pour un rayon de flamme $R < 30$ mm.

Le remplissage de la bombe est contrôlé à l'aide d'un programme LabView maison. Le programme commence par faire le vide dans la bombe grâce à la pompe à vide. La chambre est ensuite remplie par les différents gaz jusqu'à ce que le volume de chaque gaz nécessaire pour créer le mélange désiré soit atteint. Malheureusement, la pompe à vide (Robinair VacuMaster 15300) disponible au laboratoire ne permet d'atteindre qu'un vide partiel et laisse des gaz résiduels à une pression absolue de 0,164 atm. Conséquemment, les étapes de vide et de remplissage sont répétées trois fois afin d'avoir le mélange désiré. Le mélange est ensuite laissé au repos durant cinq minutes afin que la turbulence inhérente au remplissage se dissipe. Deux capteurs de pression, un mécanique et un électronique, ont été installés sur la bombe afin de garantir que le mélange soit à la pression voulue. Grâce à ces trois répétitions du cycle vide/remplissage, le volume résiduel de gaz est d'environ 50 millilitres, soit moins de 0,5% du volume de la bombe.

Le débit volumique de chaque gaz est mesuré par un débitmètre OMEGA FMA 5400. À la sortie de leur débitmètre respectif, les gaz se rejoignent dans une conduite où ils sont parfaitement mélangés avant d'aboutir dans la bombe. Le débit des gaz est ajusté afin que les volumes de gaz requis soient tous distribués dans le même laps de temps. Les mesures pour chaque mélange sont effectuées à trois reprises. Les résultats issus de la bombe à combustion qui sont présentés dans cette thèse sont la moyenne de ces trois tests.

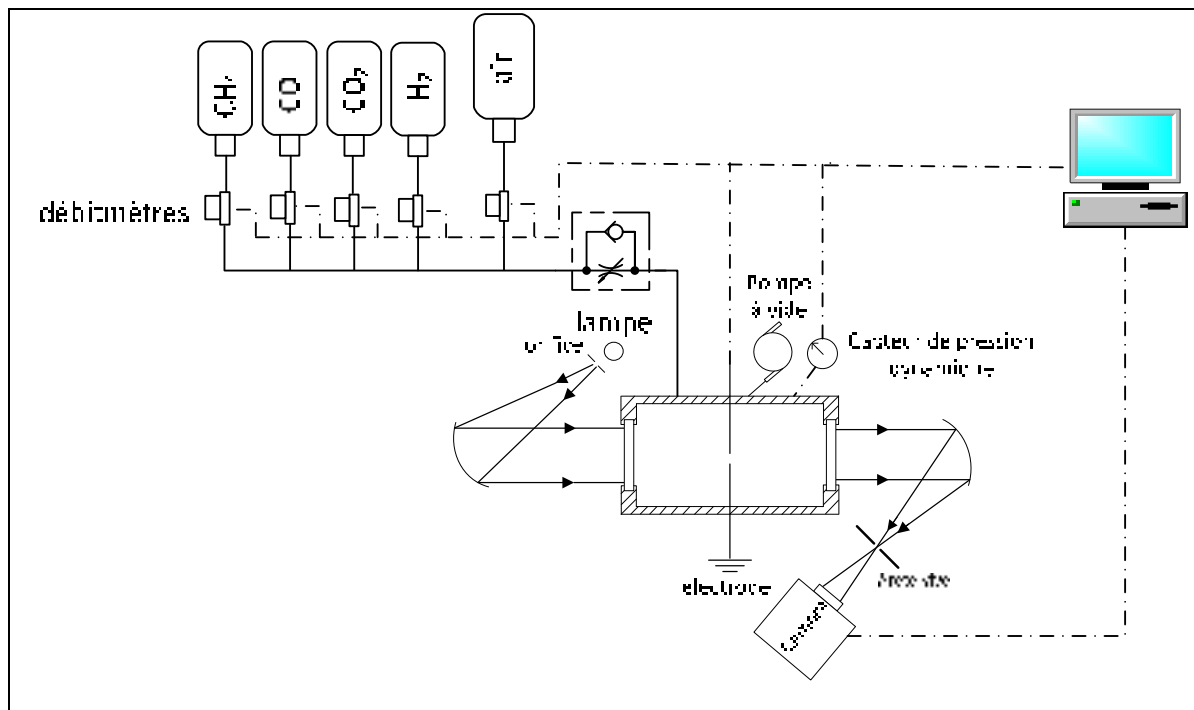


Figure 2.4 Schéma du montage expérimental

Le mélange est enflammé par deux électrodes de tungstène qui, en créant une étincelle au centre de la bombe, génèrent une flamme en expansion sphérique (FES) qui s'éteindra en touchant les parois de la bombe. La propagation de la flamme est visualisée grâce à un montage de strioscopie en Z («Z-type Schlieren»), schématisé à la Figure 2.4, comprenant une paire de miroirs paraboliques de 108 mm de diamètre. L'accès optique à l'intérieur de la bombe est assuré par deux hublots en saphir de 80 mm de diamètre encastrés à chaque extrémité du cylindre. La flamme en expansion sphérique est enregistrée par une caméra à haute vitesse (Phantom V9.1) opérant à 9801 images par seconde à une résolution de 352 x 352 pixels².

Le développement de la flamme est relativement sphérique, bien que des bosses soient visibles là où la flamme est en contact avec les électrodes. Ainsi, lorsque ces bosses sont retirées, le front de flamme peut être représenté par l'équation d'un cercle de rayon R . La méthode de détection du front de flamme utilisée par Tahtouh, Halter et Mounaïm-Rousselle (2009) et Bouvet et al. (2011b), modifiée pour prendre en compte de la présence des bosses, a été adoptée ici. Elle est constituée de quatre étapes: (i) la soustraction du fond afin de réduire

les bruits et ne garder que la flamme, (ii) le retrait de la portion excentrée ($> 0,8R$) d'une section triangulaire formant un angle de $\pi/7$ rad de chaque côté des électrodes afin de retirer les bosses, (iii) la détection du disque de flamme, représenté par tous les pixels dépassant un certain seuil d'intensité suite à soustraction du fond, (iv) identification du plus petit cercle englobant le disque; R étant le rayon du cercle. Ces étapes sont répétées pour chaque image, ce qui permet d'obtenir l'évolution du rayon de la flamme en fonction du temps t , et la vitesse de la flamme du côté des gaz brûlés (S_b) avec l'équation (2.2).

$$S_b = \frac{dR}{dt} \quad (2.2)$$

Parce que la flamme en expansion sphérique est par nature courbée et en mouvement, sa surface évolue dans le temps, occasionnant un étirement dont le taux est donné à l'équation (2.3):

$$\kappa = \frac{1}{A} \frac{dA}{dt} = \frac{1}{4\pi R^2} \frac{8\pi R dR}{dt} = \frac{2}{R} \frac{dR}{dt} = \frac{2}{R} S_b \quad (2.3)$$

La vitesse non-étirée S_b^0 est obtenue en extrapolant la vitesse étirée S_b jusqu'à avoir un étirement $\kappa = 0$. La sensibilité de S_b à la variation du taux d'étirement est exprimée par un paramètre, unique à chaque mélange (à une condition de pression, température et richesse donnée), appelé longueur de Markstein (L_b). Une étude effectuée par Chen (2011) a démontré que l'extrapolation avec le modèle non linéaire I (MNL I, équation (2.4)) est à employer lorsque L_b est positif tandis qu'il est préférable d'utiliser le modèle non linéaire II (MNL II, équation (2.5)) quand L_b du mélange est négatif.

$$S_b = S_b^0 - \frac{2S_b^0 L_b}{R} \quad (2.4)$$

$$\ln(S_b) = \ln(S_b^0) - \frac{2S_b^0 L_b}{RS_b} \quad (2.5)$$

Il faut ici noter que les calculs se limitent aux flammes qui ont un rayon compris entre 6 et 30 millimètres afin d'éviter les perturbations causées par l'allumage (Monteiro et al., 2010) et les effets de paroi discutés plus haut. Finalement, on détermine la vitesse laminaire de flamme non-étirée S_u^0 à partir de S_b^0 :

$$S_u^0 = \frac{S_b^0}{\sigma} \quad (2.6)$$

où $\sigma = \rho_u/\rho_b$ est le ratio d'expansion thermique. Notons que la vitesse est dénotée S_u^0 dans l'équation (2.6), tandis qu'elle est dénotée S_u dans l'équation (2.1). Dans le contexte des flammes laminaires, l'exposant « 0 » indique que l'effet de l'étirement sur la flamme a été complètement retiré. La valeur de la propriété est ainsi exprimée en respectant le modèle théorique de la flamme, c'est-à-dire pour une flamme libre de contraintes, mouvement et courbure. Les équations (2.4) et (2.5) permettent de retirer l'effet de l'étirement pour les flammes issues de la bombe à combustion. Comme indiqué plus haut, l'étirement d'une flamme conique stabilisée sur un brûleur Bunsen est faible et peut être négligé. L'étirement est néanmoins présent, et la vitesse des flammes du brûleur Bunsen doit donc être dénotée S_u .

Les données obtenues avec la bombe à combustion permettent de déterminer R_{cr} , qui est le moment où la vitesse du front de flamme augmente significativement et où l'étirement sur la courbe $S_b-\kappa$ cesse d'évoluer conformément aux modèles MNL I et MNL II. Une deuxième façon de déterminer R_{cr} est de visionner la séquence des images de la flamme en expansion sphérique afin d'identifier le rayon où des cellules apparaissent instantanément et uniformément sur le front de flamme. Ces deux méthodes donnent des résultats similaires (Vu et al., 2011a). Chaque mesure sera effectuée trois fois et le R_{cr} analysé sera le résultat de la moyenne des trois tests.

La Figure 2.5 montre que les vitesses laminaires de flamme obtenues par le montage expérimental sont en bon accord avec des résultats numériques calculés avec la cinétique chimique GRI-Mech 3.0. L'écart moyen entre les résultats expérimentaux et ceux du modèle

est de 8,9% en moyenne. Toutefois, la vitesse de flamme des carburants à forte concentration de H_2 ($\chi_{H_2} \geq 0,6$) à $\varphi = 0,6$ est sous-estimée d'environ 25 %.

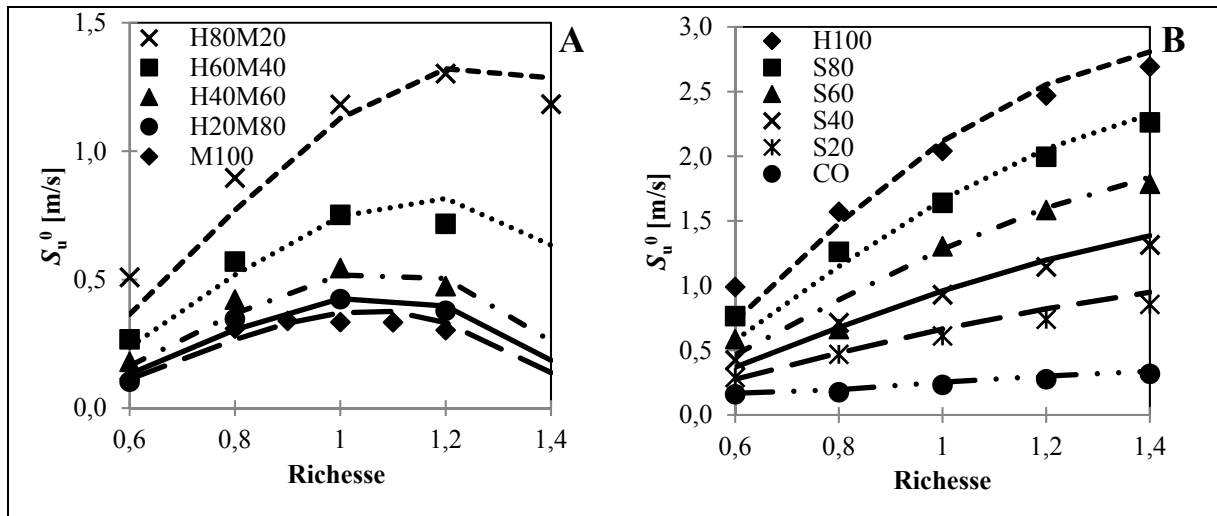


Figure 2.5 Comparaison entre les vitesses laminaires de flamme expérimentales et numériques. A: flamme de H_2/CH_4 ; B: flamme de syngas (le nombre à côté de S représentant le ratio H_2/CO)

Les longueurs de Markstein d'un ensemble de carburants et leur écart-type sont présentées à la Figure 2.6. Pour les flammes de CH_4 , la dispersion de L_b dans les mélanges riches est notablement plus élevée que dans les mélanges pauvres. À l'exception de $\varphi = 0,6$, les L_b mesurées ici sont en accord avec le spectre inférieur des données de la littérature, et sont particulièrement en bon accord avec les résultats de Tahtouh et al. (2009). Les mesures rapportées dans la littérature concernant les L_b du H_2 présentent une large dispersion à toutes les richesses. Les résultats obtenus ici se comparent bien avec le milieu de cette dispersion.

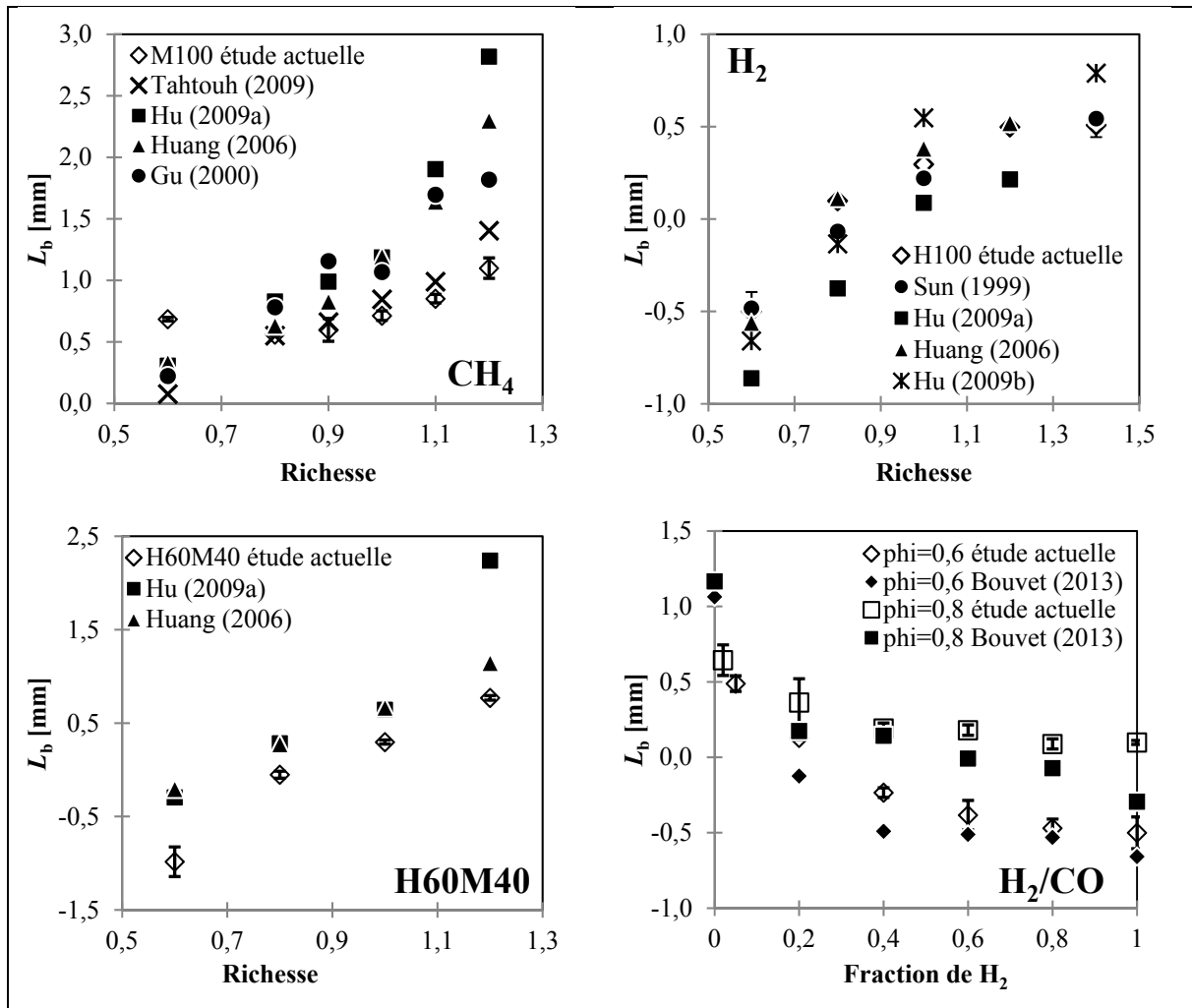


Figure 2.6 Longueurs de Markstein d'un ensemble de carburants

2.2 Incertitude des mesures expérimentales

Plusieurs capteurs et instruments de mesure sont utilisés au cours de ces expériences. Une certaine erreur, liée à la précision de ces instruments et aux traitements faits par l'utilisateur, est inévitable. La somme de ces petites erreurs engendre une incertitude sur les résultats expérimentaux finaux. Cette section présente la méthode générale permettant de calculer ces incertitudes. Un exemple de calcul complet pour chaque paramètre à l'étude (vitesse de flamme, nombre de Lewis et rayon critique) est détaillé dans les annexes I à III et résumé dans leur chapitre respectif. L'incertitude sur la richesse du mélange est pertinente pour chaque paramètre. Cependant, puisque la richesse dépend des mêmes instruments tout au

long de ce travail, l'ordre de grandeur de son incertitude est le même pour toutes les mesures. C'est pourquoi cette incertitude n'est calculée que dans le chapitre sur la vitesse de flamme.

2.2.1 Incertitude individuelle d'une variable ou d'un instrument

L'incertitude I_x d'une variable x , calculée avec l'équation (2.7), est la combinaison des incertitudes systématique (B_{xi}) et aléatoire (S_{xi}) de la variable. L'incertitude systématique indique la précision de la variable mesurée. C'est la somme des erreurs intrinsèques des instruments de mesure (B_i) et se calcule avec l'équation (2.8). Elle est généralement spécifiée par le manufacturier. Lorsque ce n'est pas le cas, cette incertitude est estimée avec différentes méthodes qui sont présentées dans les exemples de calcul quand le besoin s'en fait sentir. L'incertitude aléatoire indique pour sa part la répétabilité de la variable mesurée. Cette incertitude est mesurée avec la méthode de Student avec une confiance de 95%. L'écart-type S_{xi} de la méthode de Student se calcule avec l'équation (2.9) où t est la constante de Student pour $N-1$ degrés de liberté, N est le nombre d'échantillons, X_i une valeur de l'échantillon et X_m la moyenne des valeurs de l'échantillon.

$$I_x = \sqrt{B_{x_i}^2 + S_{x_i}^2} \quad (2.7)$$

$$B_{x_i} = \sqrt{\sum_{i=1}^M B_i^2} \quad (2.8)$$

$$S_{x_i} = \frac{t_{0,95}}{\sqrt{N}} \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (X_i - X_m)^2} \quad (2.9)$$

2.2.2 Propagation des incertitudes individuelles

Il arrive souvent qu'un calcul impliquant plusieurs variables soit nécessaire afin d'obtenir le résultat désiré. Dans ces cas, les incertitudes individuelles de chaque variable (V) s'accumulent et se propagent sur le résultat désiré. L'incertitude totale (I_T) se calcule alors à

l'aide de l'équation (2.10), où f est la fonction permettant de calculer le résultat désiré tandis que x et I_x représentent respectivement la variable mesurée et son incertitude.

$$I_T = \sqrt{\sum_{i=1}^v \left(\frac{df}{dx_i} I_{x_i} \right)^2} \quad (2.10)$$

2.3 Simulations numériques

Les différentes propriétés des combustibles, oxydant et des mélanges nécessaires aux différents calculs présentés ci-dessus ont été obtenues grâce aux différents codes contenus dans le logiciel CHEMKIN-PRO (Reaction Desing, 2010). Les masses volumiques dans les gaz frais et brûlés (ρ_u et ρ_b) de même que la température adiabatique de flamme (T_{ad}) ont été calculées par le code EQUIL (R. J. Kee, F. M. Rupley, J. A. Miller, M. E. Coltrin, J. F. Grcar et al., 2000) tandis que la vitesse laminaire de flamme (S_u^0) a été évaluée par le code PREMIX (Kee, Grcar, Smooke et Miller, 1985). Pour ce dernier, les options « multicomponent » et « effet Soret » ont été incluses dans le calcul. Des continuations ont été utilisées afin de raffiner le domaine de calcul 1D en réduisant les paramètres GRAD et CURV jusqu'à 0,015. Ceci donne un domaine plus raffiné qu'ailleurs (Bouvet et al., 2011a; Natarajan et al., 2007) et donne des solutions avec au moins 700 points.

La vitesse laminaire de flamme est l'une des principales propriétés de flamme utilisées pour valider la précision des paramètres des cinétiques chimiques qui servent à décrire les réactions chimiques. Afin d'identifier les réactions qui pourraient être revues et améliorées, les résultats expérimentaux sont comparés aux résultats issus des simulations numériques. Trois mécanismes de cinétique chimique sont employés dans le CHAPITRE 3. La cinétique de Davis (Davis et al., 2005) (14 espèces, 53 réactions) a été développée spécifiquement pour les carburants H_2/CO et est utilisée pour les carburants ne contenant pas de méthane. La cinétique USC Mech II (Wang, You, Joshi, Davis, Laskin et al., Mai 2007) (111 espèces, 784 réactions), qui contient la chimie des composés H_2/CO /méthane-à-butane, est utilisée

pour les carburants syngas-méthane. Finalement, la cinétique GRI-Mech 3.0 (Smith et al.) (53 espèces, 325 réactions) est utilisé pour tous les carburants. Cette cinétique a été développée plus particulièrement pour la combustion du méthane et du gaz naturel. Il a été validé et est employé intensivement sur une large plage de richesse, de pression et de température (Natarajan et al., 2007). Des études ont montré qu'il permet de prédire avec précision la vitesse de flamme des carburants H_2/CO (Natarajan et al., 2007; Weng, Wang, He, Whiddon, Zhou et al., 2015). Néanmoins, Vu et al. (2011b) ont récemment identifié une divergence importante pour la prédiction des vitesses de flamme des carburants syngas-méthane aux richesses élevées. Ils ont proposé une correction de la cinétique GRI-Mech 3.0 impliquant la modification de 12 réactions. Leur étude était toutefois limitée à trois carburants contenant à la fois du H_2 , du CO , du CO_2 , du CH_4 et du N_2 . Il est donc difficile de déterminer la cause de cette divergence. Des comparaisons supplémentaires sont requises avant de généraliser l'emploi de la cinétique GRI-Mech modifié. Ce présent travail propose de réexaminer systématiquement la précision de la cinétique GRI-Mech 3.0 pour les carburants $H_2/CO/CH_4$ et $H_2/CO/CO_2$ sur une large plage de richesse et d'ajout de CH_4 ou CO_2 dans le syngas de base afin de déterminer si et où la cinétique GRI-Mech modifiée est nécessaire. La cinétique utilisée dans les chapitres subséquents sera choisie suite à la comparaison entre ces trois cinétiques.

Finalement, quelques propriétés supplémentaires sont calculées en utilisant les valeurs numériques. Le ratio d'expansion thermique est obtenu avec l'équation (2.11). Le nombre de Zel'dovich (Ze) se calcule selon l'équation (2.12) avec la constante universelle des gaz R^0 et l'énergie d'activation Ea . L'énergie d'activation représente la sensibilité de la vitesse de flamme face à une variation de la température de flamme et se calcule en appliquant l'équation (2.13). Cette sensibilité est capturée en changeant légèrement la concentration de N_2 dans le mélange tout en maintenant inchangés le carburant et la richesse (Sun, Sung, He et Law, 1999a).

$$\sigma = \frac{\rho_u}{\rho_b} \quad (2.11)$$

$$Ze = E_a (T_{ad} - T_u) / (R^0 T_{ad}^2) \quad (2.12)$$

$$E_a = -2R^0 \partial \ln(\rho_u S_u^0) / \partial (1/T_{ad}) \quad (2.13)$$

2.4 Synthèse du chapitre

Ce chapitre a présenté les deux approches expérimentales ainsi que la méthode numérique qui sont mises en œuvre afin d'atteindre les sous-objectifs de cette thèse. Un montage utilisant un brûleur Bunsen a été développé afin de réaliser les trois premiers sous-objectifs, qui portent sur la vitesse laminaire de flamme. L'équipement nécessaire pour le fonctionnement du brûleur et pour l'acquisition des images a été décrit. Ensuite, la méthode employée pour déterminer la vitesse de la flamme à partir d'une image de cette même flamme a été détaillée. Puis, la bombe à combustion et le montage Schlieren utilisés pour atteindre les trois derniers sous-objectifs ont été présentés. La méthode utilisée pour détecter le front de flamme et en extraire les propriétés de vitesse et de sensibilité à l'étirement, de même que le rayon critique, a été détaillée. Les deux approches expérimentales ont été validées avec des résultats numériques et avec des résultats expérimentaux issus de la littérature. De plus, la méthode employée pour calculer les incertitudes associées aux mesures prises par ces deux bancs d'essai a été établie. Finalement, les méthodes numériques utilisées pour calculer différentes propriétés des mélanges et des flammes ont été présentées à la fin du chapitre.

CHAPITRE 3

VITESSE DE FLAMME

Ce chapitre présente les résultats obtenus avec les mesures de la vitesse de flamme laminaire. Il a pour but de répondre aux trois premiers sous-objectifs de la thèse. Ce chapitre commence par présenter en détail les incertitudes des mesures expérimentales. Les effets du ratio H_2/CO , de la concentration en CO_2 et en CH_4 et de la température initiale sur la vitesse de flamme sont ensuite analysés. Les mesures expérimentales sont en tout temps comparées aux résultats numériques. La dernière section propose une corrélation permettant de calculer la vitesse de flamme. Les résultats présentés dans ce chapitre ont été publiés dans un article de journal (Lapalme et Seers, 2014).

3.1 Incertitudes expérimentales

La méthode utilisée pour calculer les incertitudes a été présentée à la section 2.2. Elle a été appliquée ici pour déterminer les incertitudes sur la richesse et sur la vitesse de flamme. Le calcul de l'incertitude sur la richesse, qui ne dépend que des débits fournis par les débitmètres, est présenté en détail à l'ANNEXE I. L'incertitude sur la vitesse de flamme est pour sa part le résultat de la propagation des incertitudes relevées sur les paramètres de l'équation (2.1), soit le débit total et l'aire. L'incertitude de l'aire dépend de deux facteurs : le grandissement utilisé pour faire la conversion de pixel en mm et le positionnement du polynôme servant à marquer la position du maximum d'intensité du radical OH^* . Le calcul détaillé de l'incertitude sur S_u est présenté à l'ANNEXE II. Globalement, pour l'ensemble des tests, l'incertitude sur la richesse varie entre 5,1% et 24,0% tandis que l'incertitude sur S_u varie entre 3,6% et 6,3%. Les incertitudes sur S_u et ϕ de l'ensemble des tests sont présentées à l'ANNEXE IV.

3.2 Résultats expérimentaux

3.2.1 Carburants testés

Comme illustré précédemment à la Figure 1.3, la composition des syngas varie grandement en fonction de la matière première qui est utilisée et du procédé de gazéification retenu. Les syngas étudiés dans ce chapitre ont été choisis de manière à couvrir cette variabilité. Un accent particulier a été mis sur les carburants syngas-CO₂ et syngas-CH₄ puisqu'ils sont moins couverts dans la littérature. Les compositions retenues sont présentées au Tableau 3.1. L'information dans les étiquettes donne des renseignements sur la composition. Le nombre suivant la lettre S indique la fraction volumique de H₂ telle que si le carburant était composé uniquement de H₂ et de CO. Ce nombre indique donc le ratio H₂/CO normalisé $R' = \chi_{H_2} / (\chi_{H_2} + \chi_{CO})$. Le reste de l'étiquette indique la fraction volumique de CO₂ et de CH₄, représentée par les lettres C et M respectivement.

Ces carburants permettent d'étudier les effets du ratio H₂/CO et du CO₂ jusqu'au maximum de leur plage de variation rapportée par la littérature. Les trois carburants contenant du CH₄ sont établis de manière à permettre la comparaison directe avec les effets du CO₂ tout en représentant les trois types de syngas, soit le syngas issu de la gazéification du charbon, issu de la gazéification de la biomasse et la co-combustion. Lors de l'étude des effets du CO₂ et du CH₄, le ratio H₂/CO est fixé à 1, qui est le ratio le plus fréquemment observé suite à la gazéification et qui est aussi le ratio le plus utilisé dans les études du syngas en laboratoire. La plage de richesse s'étale de 0,8 à 2,2 pour les syngas sans méthane. Par contre, la plus basse limite d'inflammabilité du CH₄ impose que la richesse maximale atteinte par les carburants S50M5, S50M20 et S50M40 soit de 2,2, 1,8 et 1,6 respectivement, tandis que les richesses minimales sont respectivement de 0,8, 0,8 et 0,9. Le pas de richesse pour tous les carburants à l'étude est de 0,1. Ces mesures sont effectuées à pression et température ambiante, soit à 1 atm et 295 K. Par la suite, l'effet de la température initiale est étudié grâce à des tests effectués aux températures initiales de 350, 400 et 450 K. Les mesures à haute température seront effectuées pour tous les carburants du Tableau 3.1, mais seulement à des richesses de 0,8, 1,0 et 1,2.

Tableau 3.1 Composition des carburants pour l'étude sur la vitesse de flamme

Nom	Ratio	CO	H ₂	CH ₄	CO ₂
	H ₂ /CO	(% vol)	(% vol)	(% vol)	(% vol)
syngas					
S25	1/3	75	25	0	0
S50	1	50	50	0	0
S75	3	25	75	0	0
Syngas-CO ₂					
S50C10	1	45	45	0	10
S50C20	1	40	40	0	20
S50C30	1	35	35	0	30
S50C40	1	30	30	0	40
Syngas-méthane					
S50M5	1	47,5	47,5	5	0
S50M20	1	40	40	20	0
S50M40	1	30	30	40	0

3.2.2 Influence du ratio H₂/CO

L'influence du ratio H₂/CO est étudiée en comparant les S_u des syngas S25, S50 et S75, qui présentent des ratios de 0,33, 1 et 3 respectivement. Rappelons que la vitesse dans ce chapitre est dénotée S_u plutôt que S_u^0 parce que l'étirement d'une flamme conique stabilisée sur un brûleur Bunsen, bien que négligeable, n'est pas totalement retiré. La Figure 3.1 montre S_u en fonction de φ à 295 K et 1 atm. La plus haute vitesse est atteinte par le S75 à cause de sa plus grande proportion de H₂, ce qui lui donne notamment une plus grande diffusivité thermique et massique. Les mesures sont correctement reproduites par les cinétiques GRI Mech 3.0 et Davis, particulièrement pour le S50 pour lequel un écart maximal de 4% est observé. La cinétique de Davis prédit mieux le S25 ($\pm 5\%$) que GRI-

Mech 3.0 ($\pm 12\%$). On observe toutefois le contraire pour le S75, GRI-Mech 3.0 ($\pm 3\%$) étant plus en accord que la cinétique de Davis ($\pm 10\%$).

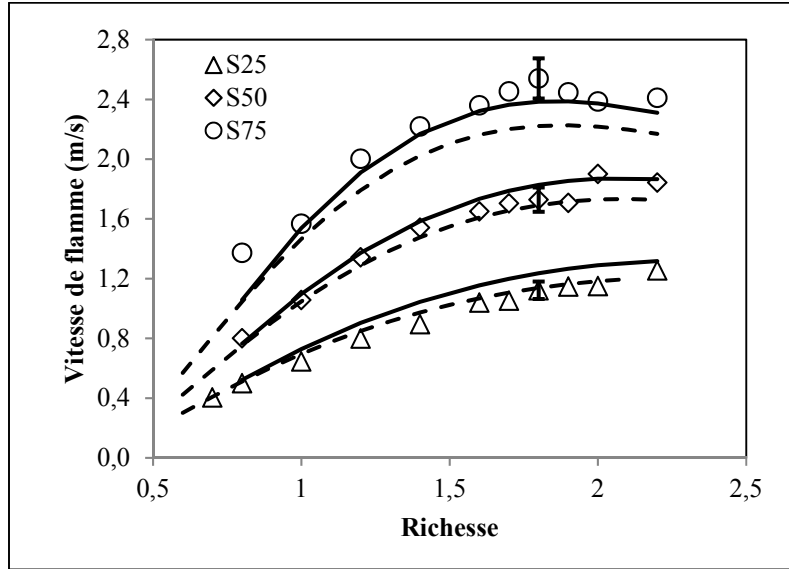


Figure 3.1 Influence du ratio H_2/CO sur S_u . Les symboles représentent les résultats expérimentaux. Les lignes pleines : GRI-Mech 3.0; les lignes pointillées : cinétique de Davis

On note aussi que la richesse où la vitesse est maximale ($S_{u,max}$) dépend du ratio H_2/CO . La Figure 3.1 montre que le syngas S25, fortement concentré en CO, atteint $S_{u,max}$ à une richesse égale ou supérieure à 2,2. Lorsque la concentration de H_2 augmente, la position du $S_{u,max}$ se déplace vers des mélanges moins riches et s'établit à $\phi \sim 2,1$ pour le S50 et à $\phi \sim 1,9$ pour le S75. La richesse où S_u est maximale ($\phi_{Su=max}$) pour le S50 est similaire à ce qui est observé par Sun et al. (2007), mais est plus riche que le $\phi_{Su=max}$ mesuré par Dong et al. (2009) ($\phi_{Su=max} = 1,8$) ou par McLean et al. (1994) ($\phi_{Su=max} = 1,6$). Contrairement à ce qui est observé par Dong et al. (2009), les données de la présente étude indiquent que $\phi_{Su=max}$ se déplace vers les mélanges moins riches quand le ratio H_2/CO est augmenté. Un tel déplacement avait déjà été observé par McLean et al. (1994) et Sun et al. (2007), mais seulement pour des carburants ayant un ratio $H_2/CO \leq 1$. Glassman et Yetter (2008) rapportent que le CO pur atteint $S_{u,max}$ à une richesse $\phi_{Su=max}$ de 2,05, ce qui est plus élevé que le $\phi_{Su=max}$ du H_2 qui est de 1,8. Toutefois, contrairement à Glassman et Yetter (2008), les

résultats de la Figure 3.1 impliquent que le CO a un $\phi_{Su=\max} > 2,2$ puisque le $\phi_{Su=\max}$ du S25 est déjà égal ou supérieur à 2,2. Les présents résultats confirment néanmoins que le CO atteint sa vitesse maximale à une richesse plus élevée que le H₂.

3.2.3 Influence du CH₄

L'influence d'un ajout de CH₄ dans le syngas est étudiée en utilisant comme base le carburant S50, qui a un ratio H₂/CO de 1. La vitesse de flamme du CH₄ est notablement plus faible que celle du S50. Conséquemment, l'ajout de CH₄ cause une décroissance de S_u , tel qu'illustré à la Figure 3.2. La Figure 3.2 montre aussi que l'ajout de méthane entraîne un déplacement de $\phi_{Su=\max}$ vers des mélanges moins riches, se rapprochant ainsi du $\phi_{Su=\max}$ du CH₄ pur qui est près de 1,1. Le déplacement causé par l'ajout de CH₄ est plus important que celui causé par l'ajout de CO₂, qui sera présenté plus loin.

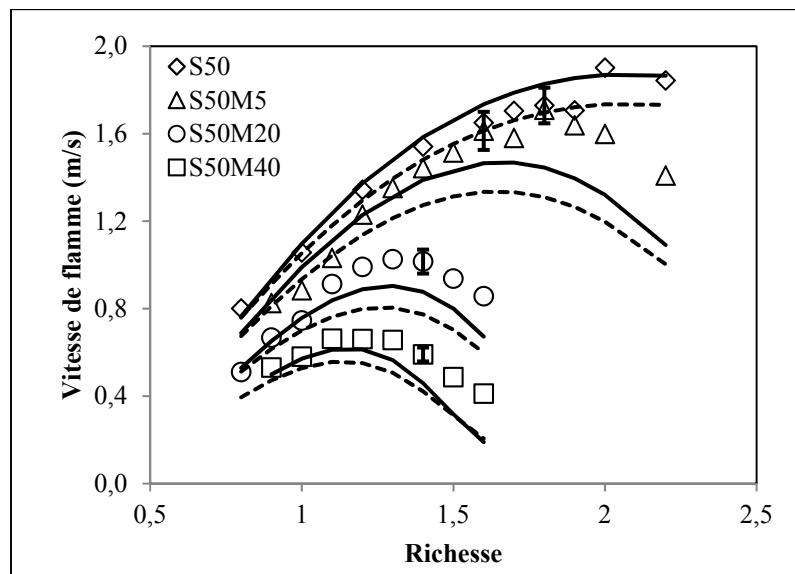


Figure 3.2 Impact sur S_u d'un ajout de CH₄ dans du syngas.
 Les symboles représentent les résultats expérimentaux.
 Lignes pleines : GRI-Mech 3.0; lignes pointillées : USC Mech II

Tel qu'illustré à la Figure 3.2, les cinétiques chimiques GRI Mech 3.0 et USC Mech II ne sont pas en mesure de correctement représenter ce déplacement. S_u et la croissance de S_u sont correctement prédites par la cinétique GRI-Mech 3.0 quand le mélange est moins riche que

$\varphi_{Su=max}$. Par contre, la croissance de S_u prédite par la cinétique devient sous-estimée quand φ s'approche de $\varphi_{Su=max}$ et le S_u maximum est atteint à un φ légèrement moins riche. Le $\varphi_{Su=max}$ prédit par les cinétiques est constamment plus faible que ce qui est observé expérimentalement. La cinétique USC Mech II donne un S_u maximal à la même richesse que GRI-Mech 3.0. Et comme la cinétique GRI-Mech 3.0, la cinétique USC Mech II prédit correctement S_u des mélanges pauvres, mais sous-estime S_u près de $\varphi_{Su=max}$ à cause d'un plus faible rythme de croissance de S_u en fonction de φ .

Cet écart entre les déplacements du $\varphi_{Su=max}$ numériques et expérimentaux dans les carburants syngas-méthane a été observé précédemment par Vu et al. (2011b) lors d'une étude sur la cellularité. À l'aide d'une analyse de sensibilité sur les espèces CH_4 , H_2 et CO à $\varphi = 1,5$ effectuée dans CHEMKIN avec la cinétique GRI-Mech 3.0, Vu et al. (2011b) ont identifié les réactions présentant les plus hautes sensibilités. Suite à cette analyse, ils ont modifié la cinétique GRI-Mech 3.0 en mettant à jour les coefficients de 12 réactions avec des coefficients publiés récemment. Leur étude portait toutefois sur des carburants composés de H_2 , CO , CO_2 , CH_4 et N_2 , et il est donc impossible de savoir si l'écart de déplacement de $\varphi_{Su=max}$ dans leur étude est dû au CH_4 ou à la complexité de leurs carburants. L'analyse de sensibilité a donc été refaite ici afin d'identifier les réactions les plus importantes dans le calcul du S_u pour des carburants uniquement composés de H_2 , CO et CH_4 . Cette analyse est faite à $\varphi = 1,4$. À cette richesse, trois cas sont possible: 1) les vitesses mesurées et prédites sont toutes deux en train d'augmenter (S50 et S50M5) en fonction de φ , 2) elles sont toutes deux en train de diminuer (S50M40), ou 3) les prédictions cinétiques donnent une vitesse décroissante alors que S_u est à son maximum expérimental (S50M20). La sensibilité du méthane pur est ajoutée pour couvrir les deux extrêmes. La cinétique GRI-Mech 3.0 est choisie pour cette analyse parce qu'elle présente moins d'écart avec les résultats expérimentaux et qu'elle est plus fréquemment utilisée. La Figure 3.3 présente les coefficients de sensibilité normalisée des constantes pré-exponentielles des dix réactions les plus importantes. Les réactions identifiées comme étant importantes par la présente analyse basée sur S_u sont similaires à celles identifiées par Vu et al. (2011b) lors de leur analyse basée sur les espèces. Conséquemment, S_u est recalculée en utilisant la version modifiée de

la cinétique GRI-Mech 3.0 proposée par Vu et al. (2011b). Le Tableau 3.2 présente les coefficients qui ont été changés.

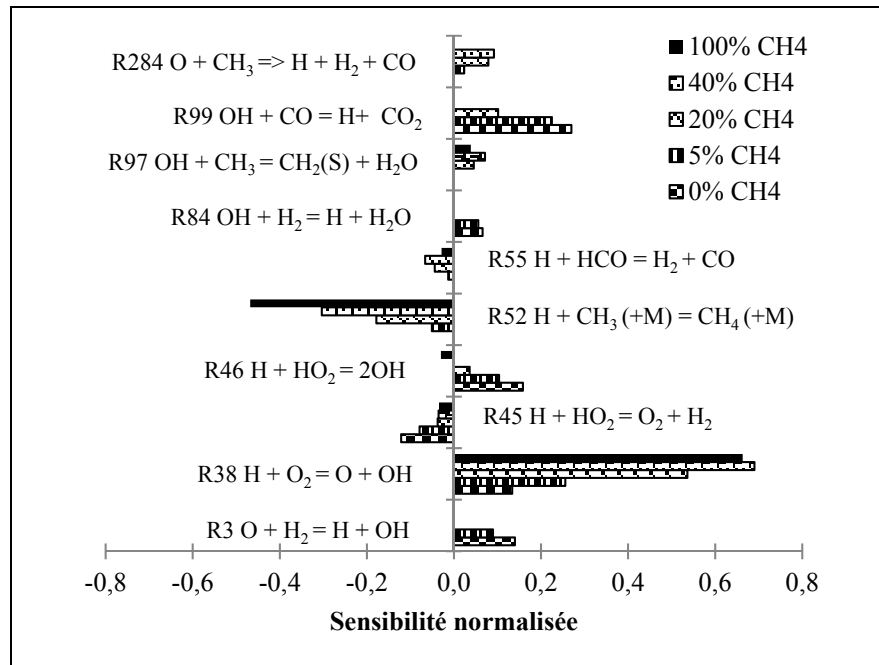


Figure 3.3 Coefficients de sensibilité normalisée des constantes pré-exponentielles de S_u pour des carburants équimolaires H₂/CO à $\phi = 1,4$ comportant différentes concentrations de CH₄

Tableau 3.2 Réactions modifiées par Vu et al. (2011b). Unités en mol-cm-s-cal-K

Numéro	Réactions	A	n	E _A
R3	$O + H_2 \rightleftharpoons H + OH$	3,820e+12	0,000	7948,00
R10	$O + CH_3 \rightleftharpoons H + CH_2O$	8,430e+13	0,000	0,00
R38	$H + O_2 \rightleftharpoons O + OH$	3,547e+15	-0,406	16599,00
R41	$2H + H_2O \rightleftharpoons O + OH$	5,624e+19	-1,250	0,00
R45	$H + HO_2 \rightleftharpoons O_2 + H_2$	1,660e+13	0,000	823,00
R46	$H + HO_2 \rightleftharpoons 2OH$	1,700e+14	0,000	875,00
R52	$H + CH_3(+M) \rightleftharpoons CH_4(+M)$	1,270e+16	-0,630	383,00
R53	$H + CH_4 \rightleftharpoons CH_3 + H_2$	5,470e+07	1,970	11210,00
R55	$H + HCO \rightleftharpoons H_2 + CO$	5,000e+13	0,000	0,00
R84	$OH + H_2 \rightleftharpoons H + H_2O$	1,170e+09	1,300	3635,28
R98	$OH + CH_4 \rightleftharpoons CH_3 + H_2O$	5,720e+06	1,960	2639,00
R166	$HCO + H_2O \rightleftharpoons H + CO + H_2O$	2,244e+18	-1,000	17000,00

La Figure 3.4 montre S_u calculée en utilisant cette version modifiée de la cinétique GRI-Mech et permet la comparaison avec les résultats de la version originale ainsi qu'avec les résultats expérimentaux. On remarque que la cinétique modifiée prédit plus précisément $\phi_{Su=max}$. Par exemple, la vitesse maximale du S50M5 survient à $\phi = 1,8$ selon la cinétique modifiée, ce qui correspond à la position expérimentale du sommet. Le même sommet est atteint à $\phi = 1,65$ selon la version originale de la cinétique GRI-Mech. De plus, les prédictions de S_u du côté riche du maximum sont aussi plus précises. L'écart entre S_u expérimentale et numérique à une richesse légèrement supérieure à la richesse où S_u atteint son maximum (soit à $\phi = \phi_{Su=max} + 0,2$ basé sur le $\phi_{Su=max}$ expérimental) passe de 19% à 10% pour le S50M5, de 15% à 1% pour le S50M20 et de 24% à 2% pour le S0M40 quand la cinétique modifiée est utilisée à la place de l'originale. Du côté pauvre, la cinétique modifiée ne change pas le comportement de S_u . De même, la prédiction du S_u des syngas sans méthane n'est pas notablement influencée par les modifications apportées à la cinétique GRI-Mech 3.0, comme montré pour le S50 à la Figure 3.4. Somme toute, cette cinétique modifiée, qui dérive de la cinétique GRI-Mech 3.0, modélise correctement S_u des syngas et des carburants syngas-méthane. Il est toutefois important de noter que cette version modifiée de la cinétique GRI-Mech 3.0 n'a été validée que pour des syngas contenant une faible quantité de CH_4 . Il est recommandé de limiter son utilisation aux syngas contenant entre 1 et 40% de CH_4 .

3.2.4 Influence du CO_2

La Figure 3.5 présente S_u mesurée dans les syngas dilués avec du CO_2 . Cette figure présente aussi les résultats expérimentaux de Prathap et al. (2012) pour les carburants ayant une concentration de CO_2 inférieure ou égale à 20% et montre une bonne similitude des tendances et valeurs avec les résultats de la présente étude.

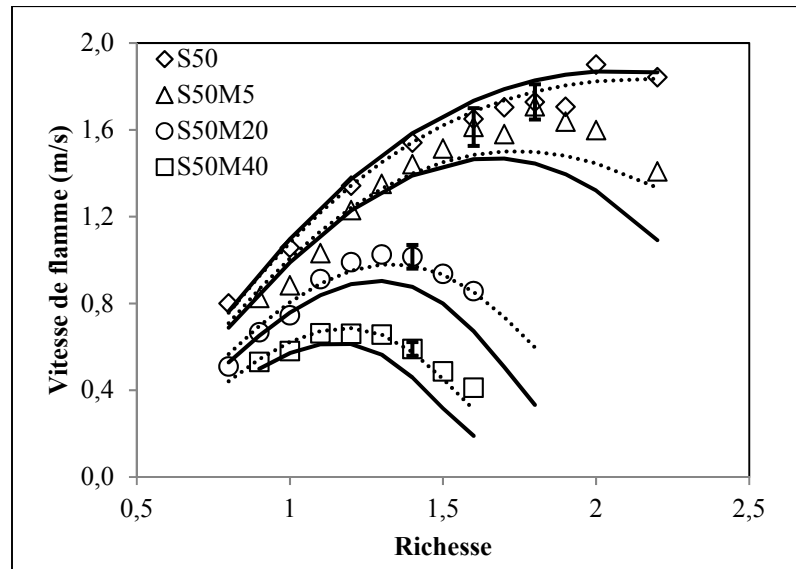


Figure 3.4 Comparaison entre la cinétique GRI-Mech 3.0 originale (ligne pleine) et la version modifiée selon Vu et al. (2011b) (ligne pointillée). Les symboles représentent les résultats expérimentaux

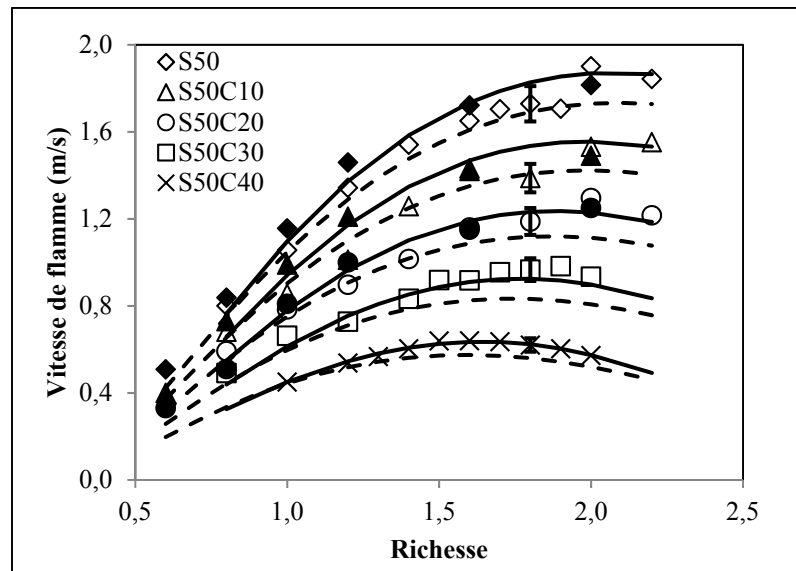


Figure 3.5 Influence de la concentration de CO_2 sur S_u . Comparaison entre les mesures de la présente étude (symboles vides) et celles de Prathap et al. (2012) (symboles pleins) (lignes pleines : GRI-Mech 3.0; lignes pointillées : Davis)

La Figure 3.5 indique que $\varphi_{Su=max}$ n'est pas notablement affectée par l'addition de CO₂. Ce sommet demeure autour de $\varphi = 2,1$ jusqu'à 20% de CO₂. Lorsque plus de CO₂ est ajouté dans le syngas, le $S_{u,max}$ se déplace vers des mélanges moins riches et est atteint à $\varphi = 1,9$ pour le S50C30 et à $\varphi = 1,7$ pour le S50C40. Cette tendance dans les résultats est similaire à celle de Kishore et al. (2011), qui observent que le $\varphi_{Su=max}$ se déplace de 1,6 à 1,2 quand la concentration de CO₂ dans un S50 est augmentée de 40 à 60%. Prathap et al. (2012) présentent des syngas ayant des niveaux de dilution similaires à ceux de la présente étude, et pour lesquels $S_{u,max}$ est situé à $\varphi = 2,0$ à 0, 10 et 20% de CO₂ et à $\varphi = 1,6$ dans le syngas dilué à 30% CO₂. Notons par contre que leur article, dans la région pertinente à ce phénomène, présente des résultats seulement pour des richesses de 1,6, 2,0 et 2,4. L'absence de mesures à des richesses intermédiaires les empêche de déterminer si le déplacement est graduel ou soudain.

Comme le montre la Figure 3.6, l'ajout de CO₂ cause une décroissance linéaire de S_u pour toutes les richesses évaluées dans le présent travail. Cette décroissance est reproduite fidèlement par les cinétiques. De fait, l'addition de CO₂ n'a pas altéré la capacité des cinétiques à prédire S_u . Les écarts sont similaires à ceux observés sur les syngas sans dilution, à l'exception des mélanges pauvres chez qui S_u devient légèrement sous-estimée (~10%). Ce comportement, plus présent avec la cinétique GRI-Mech 3.0, avait été rapporté précédemment par Natarajan et al. (2007).

3.2.5 Effets thermiques et cinétiques du CO₂

Tel que noté précédemment, $S_{u,max}$ se déplace vers des mélanges moins riches quand du CO₂ est ajouté au syngas. Ce phénomène s'explique par la variation de la diffusivité thermique du mélange occasionnée par l'ajout de CO₂. La vitesse de flamme est proportionnelle à la racine carrée du produit de la diffusivité thermique (α) et de la vitesse de réaction (RR) ($S_u^0 \propto \sqrt{\alpha \cdot RR}$). Or, cette dernière est influencée par des effets chimiques et cinétiques.

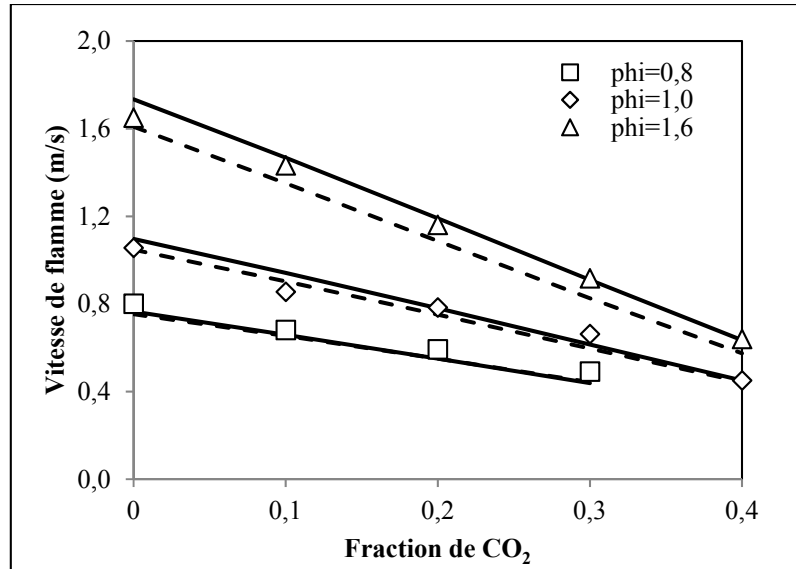


Figure 3.6 Évolution linéaire de S_u lors d'un ajout de CO₂.
 Symboles : résultats expérimentaux;
 lignes pleines : GRI-Mech 3.0; lignes pointillées : Davis

La procédure présentée par Galmiche, Halter, Foucher et Dagaut (2011) permet d'isoler les effets thermiques du CO₂ — lesquels sont associés à des changements de propriétés thermophysiques telles que la diffusivité thermique et la capacité thermique — et les effets cinétiques, qui découlent principalement des réactions de dissociation du CO₂ (Halter et al., 2009). Cette procédure repose sur le calcul numérique de la vitesse de flamme dans le module PREMIX de CHEMKIN en remplaçant le CO₂ par la molécule fictive FCO₂, qui possède les mêmes propriétés thermophysiques que le CO₂ normal, mais qui n'intervient dans aucune réaction. Afin d'avoir un cas de référence, une deuxième série de simulation doit aussi être effectuée en utilisant cette fois l'azote (N₂) comme diluant (Galmiche et al., 2011). La réduction de S_u due aux effets thermiques est obtenue par le ratio suivant:

$$\frac{S_u(N_2) - S_u(FCO_2)}{S_u(N_2) - S_u(CO_2)} \quad (3.1)$$

Dans ce travail, l'étude des effets thermiques et chimiques a porté sur un carburant H₂/CO ayant un ratio de 1 et une proportion de CO₂ variant de 0 à 40%. Les simulations sont effectuées avec la cinétique GRI-Mech modifiée. La Figure 3.7 présente la contribution de

l'effet thermique sur la réduction de la vitesse de flamme. La contribution de l'effet thermique est invariablement plus importante que celle de l'effet cinétique et gagne même en importance avec l'accroissement de la proportion de CO_2 . Ce comportement est similaire à ce qui a été observé lors d'un ajout de CO_2 à une flamme de CH_4 (Galmiche et al., 2011; Halter et al., 2009). La Figure 3.7 montre aussi que l'effet thermique est minimal à $\varphi = 1,4$ pour toutes les proportions de CO_2 . C'est aussi à cette richesse que le taux de production (TdP) de CO_2 , représenté sur la Figure 3.7 par le TdP de la réaction R99 ($\text{H}_2 + \text{CO} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{H}$; qui est 50 fois plus rapide que la seconde plus importante réaction impliquant le CO_2) atteint son maximum. Ces résultats confirment que la dilution au CO_2 , à cause de son impact thermique, réduit la température adiabatique de flamme (T_{ad}) et donc la vitesse de réaction.

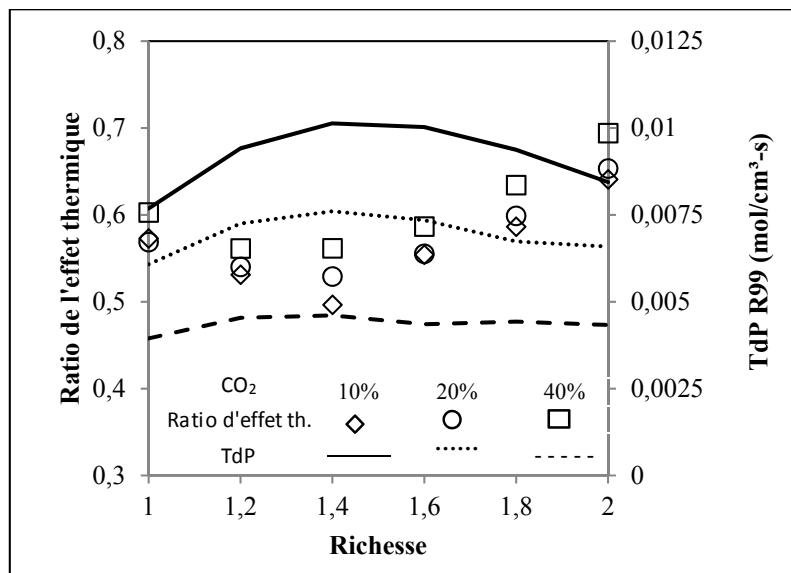


Figure 3.7 Contribution de l'effet thermique sur la réduction de la vitesse de flamme à différentes proportions de CO_2

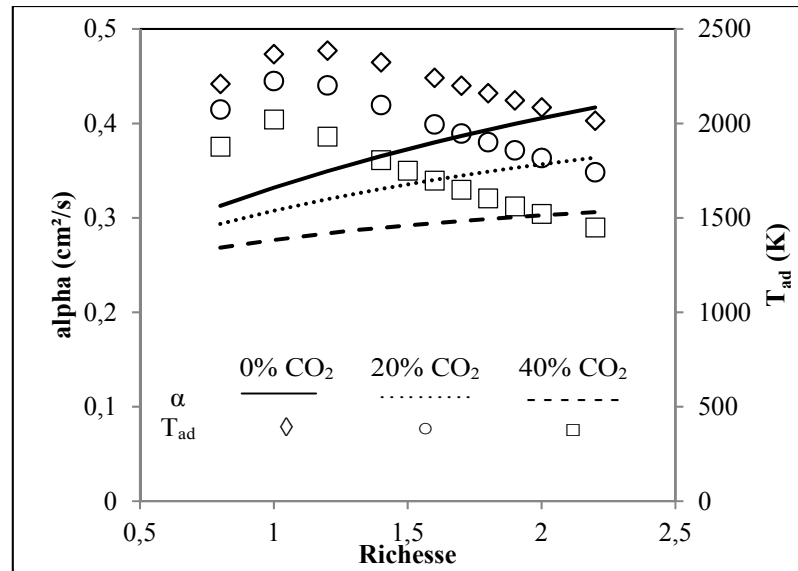


Figure 3.8 Diffusivité thermique et température adiabatique de flamme en fonction de la richesse

La vitesse de réaction (RR) et T_{ad} étant fortement liées, et T_{ad} étant plus simple à calculer, la relation $S_u^0 \propto \sqrt{\alpha \cdot RR}$ est transformée pour devenir $S_u^0 \propto \sqrt{\alpha \cdot T_{ad}}$. Ainsi, la relation est explicitement dépendante envers T_{ad} . Il reste maintenant à évaluer l'impact de l'ajout de CO_2 sur α . La Figure 3.8 montre T_{ad} en fonction de la richesse, et ce pour différentes concentrations de CO_2 . T_{ad} atteint un maximum dans les mélanges légèrement riches tandis que la diffusivité thermique augmente avec ϕ . Par contre, le taux d'augmentation de la diffusivité thermique avec la richesse est moins important lors d'un ajout de CO_2 au carburant. Tel qu'illustré à la Figure 3.8, α augmente de 33% pour le S50 entre $\phi = 0,8$ et $\phi = 2,2$, alors qu'elle n'augmente que de 14% pour le S50C20. Conséquemment, l'influence relative de α sur S_u est réduite, ce qui rend S_u plus dépendant de la vitesse de réaction et donc de la température de flamme. Par conséquent, la diminution de la température de flamme avec l'accroissement de la richesse a un plus grand impact sur S_u dans les carburants contenant plus de CO_2 . Ceci se traduit, dans la relation $\sqrt{\alpha \cdot T_{ad}}$, en un déplacement de $S_{u,max}$ vers de plus faibles richesses.

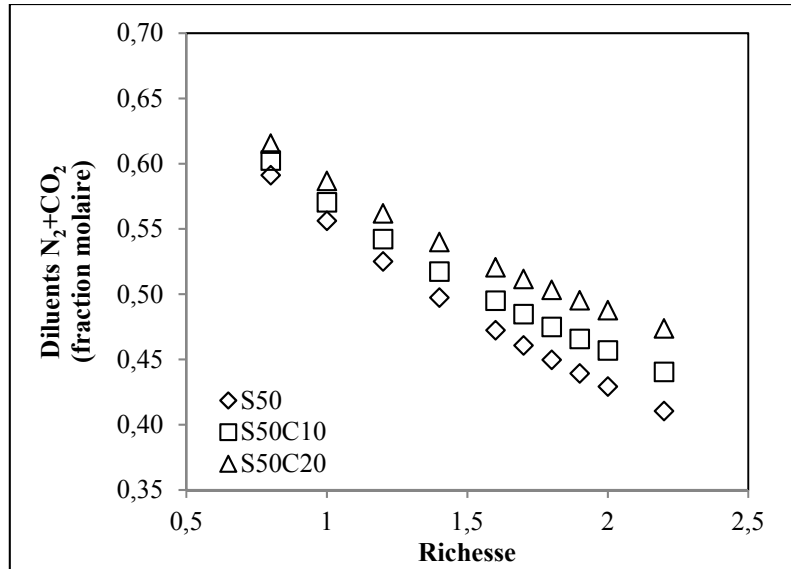


Figure 3.9 Fraction molaire totale de diluants ($\text{CO}_2 + \text{N}_2$) en fonction de la richesse

Ce déplacement de $S_{u,max}$ est de plus facilité par l'impact de l'ajout de CO_2 sur la concentration totale de diluants. La Figure 3.9 montre que dans les carburants contenant plus de CO_2 , la diminution de la proportion totale de diluants ($\text{CO}_2 + \text{N}_2$), entraînée par l'augmentation de la richesse, est plus faible. De ce fait, l'écart entre les taux de dilution totale s'accroît avec la richesse, ce qui a deux conséquences. Premièrement, cette augmentation de l'écart accélère la réduction de S_u dans les mélanges riches des carburants contenant du CO_2 (Prathap et al., 2012). Deuxièmement, elle implique que la diminution de la température de flamme (et donc de RR) due à l'augmentation de ϕ sera plus grande dans les carburants contenant plus de CO_2 , facilitant donc le déplacement de $S_{u,max}$.

3.2.6 Effet de la température initiale

Jusqu'à présent, tous les essais ont été menés à la température ambiante du laboratoire, qui est évaluée à 295K. Afin d'analyser l'effet de la température initiale des carburants, des essais supplémentaires ont été effectués à des températures de 350 K, 400 K et 450 K. Les mesures sont cependant effectuées seulement pour des richesses de 0,8, 1,0 et 1,2. La Figure 3.10 présente les résultats pour le carburant S50. Comme attendu, S_u augmente en

parallèle avec la température. Peu de mesures de S_u de syngas à haute température ont été publiées dans la littérature. Les résultats d'essais menés sur du S50 à 400K par Natarajan et al. (2005) et Singh et al. (2012) sont présentés à la Figure 3.10.

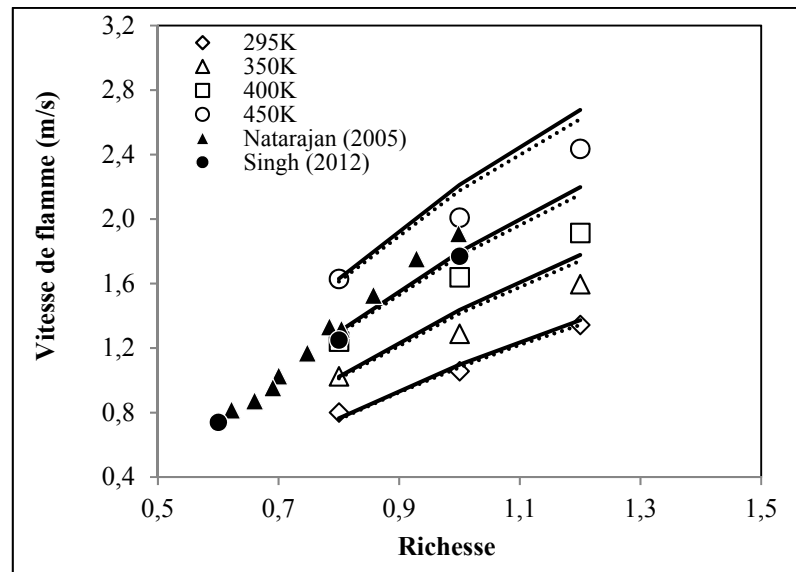


Figure 3.10 Effet de la température initiale sur la vitesse de flamme du carburant S50. (symboles vides: ce travail; symboles pleins: résultats à 400 K de Natarajan et al. (2005) et Singh et al. (2012). Les lignes pleines : GRI-Mech 3.0; les lignes pointillées : GRI-Mech modifié)

Leurs résultats sont similaires à ceux mesurés de ce travail (écart inférieur à $\pm 5\%$), à l'exception de la mesure de Natarajan et al. (2005) à $\phi = 1$, où l'écart atteint 11%. Les résultats expérimentaux concordent bien avec ceux de la cinétique GRI-Mech 3.0 ou de sa version modifiée sur toute la plage de température (écart de moins de $\pm 8\%$), bien qu'il y ait une légère tendance vers la surestimation de S_u quand la température augmente. Cette tendance a aussi été observée par Natarajan et al. (2005) et Singh et al. (2012) sur leurs résultats à 500 K. Cette tendance est aussi notée pour les carburants S25 et S75.

L'impact de l'augmentation de la température initiale sur un syngas contenant du CO_2 est analysé en comparant les vitesses des carburants S50 et S50C20. Les résultats de la Figure 3.11 montrent que la capacité du CO_2 à réduire S_u diminue lorsque la température

s'accroît. Par exemple, à $\varphi = 1,2$ et 295 K, S_u décroît de 41% en passant de S50 à S50C20. Par contre, à 450 K, la décroissance n'est que de 27%. Par conséquent, l'augmentation de la température initiale réduit l'influence du CO_2 sur la vitesse. À une richesse donnée, le rythme de décroissance de la température adiabatique de flamme causé par l'ajout de CO_2 est plus faible dans les mélanges ayant une température initiale plus élevée. Cette plus faible sensibilité de la température de flamme explique probablement la plus faible sensibilité de S_u envers le CO_2 quand la température initiale est plus importante.

Tel que mentionné plus haut, la vitesse de flamme du S50 est correctement prédite par les cinétiques GRI-Mech originale et modifiée pour toute la plage de température à l'étude, mais avec une légère tendance à la surestimation. Pour sa part, le S50C20 présente la tendance contraire: la sous-estimation de S_u observée sur les mélanges pauvres à 295 K s'accroît au fur et à la mesure que la température initiale est augmentée. De plus, cette sous-estimation tend à s'étendre vers les mélanges riches.

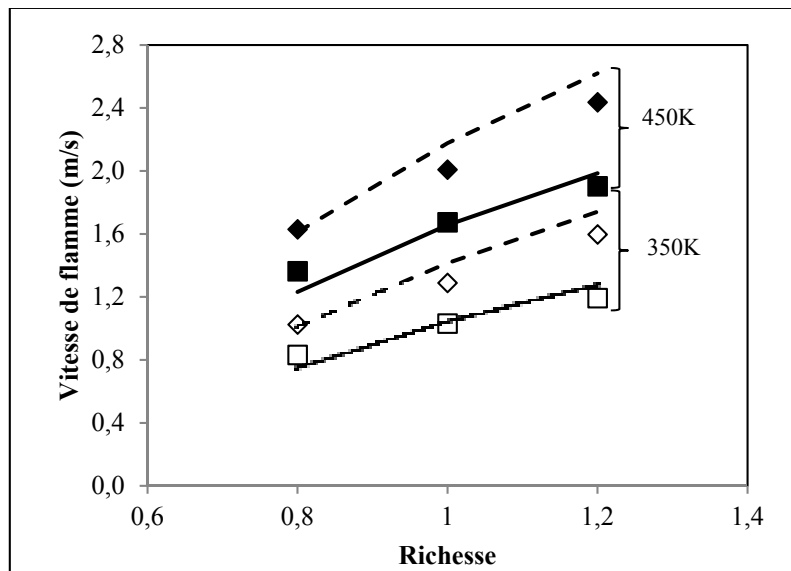


Figure 3.11 Vitesse de flamme du carburant S50 (losanges et ligne pointillée) et S50C20 (carrés et ligne pleine) à 350 K et 450 K. Les lignes : GRI-Mech modifié

La Figure 3.12 présente la variation de S_u occasionnée par l'ajout de CH_4 au syngas pour des températures initiales de 350 K et 450 K. Comme attendu, la vitesse est respectivement réduite et augmentée par l'ajout de CH_4 et l'accroissement de la température. Contrairement au CO_2 , le taux de réduction de la vitesse induit par l'ajout de CH_4 ne dépend pas de la température initiale du mélange. La tendance des cinétiques GRI-Mech originale et modifiée à surestimer la vitesse du S50 quand la température initiale est augmentée est aussi observée pour le S50M5. La cinétique originale tend par contre à sous-estimer S_u du S50M40 quand la température augmente, avec un écart passant de 1% à 9% entre 350 K à 450 K (à $\phi = 1,0$). Sur cette plage de température, une meilleure prédiction est obtenue avec la cinétique modifiée. Toutefois, ce résultat pourrait n'être que fortuit puisque les résultats obtenus avec la cinétique modifiée passent d'une légère surestimation à 350 K (8%) à une légère sous-estimation à 450 K (2%). Dans les faits, les deux versions de GRI-Mech sous-estiment le rythme de croissance de S_u généré par l'accroissement de la température initiale d'un carburant contenant une plus forte proportion de CH_4 , ce qui mène à une sous-estimation de S_u à partir de 450K.

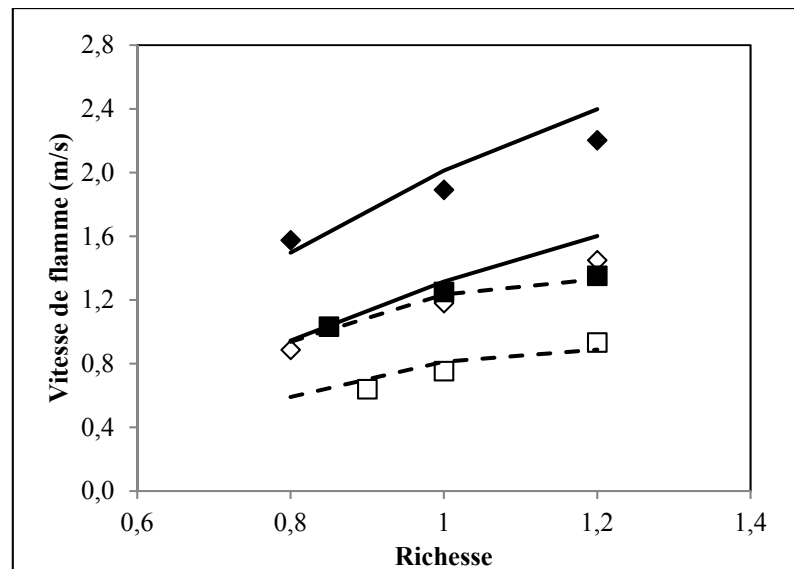


Figure 3.12 Vitesse laminaire de flamme des carburants S50M5 (losanges et lignes pleines) et S50M40 (carrées et lignes pointillées) à 350 K (symboles vides) et 450 K (symboles pleins). Les lignes : GRI-Mech modifié

3.3 Corrélation pour la vitesse de flamme

Une corrélation pour la prédiction de la vitesse de flamme des carburants $H_2/CO/CO_2/CH_4$ basée sur les résultats expérimentaux est maintenant présentée. Des données de simulation, obtenues avec la version modifiée de la cinétique GRI-Mech, sont aussi utilisées pour évaluer l'impact du CO_2 et du CH_4 sur les carburants ayant un ratio H_2/CO différent de 1. Cette corrélation est conçue d'après le modèle présenté par Turns (2011) pour les alcanes:

$$S_u = S_{u,ref} \times (1 - c \times \chi_{CO_2}) \left(\frac{T}{300} \right)^a \quad (3.2)$$

où

$$S_{u,ref} = S_{u,max} - B(\varphi - \varphi_{Su=max})^2 \quad (3.3)$$

Dans l'équation (3.2), $\varphi_{Su=max}$ représente la richesse à laquelle $S_{u,max}$ (qui représente la vitesse maximale) est atteinte. B représente le taux de décroissance de S_u depuis son maximum. $S_{u,max}$, B et $\varphi_{Su=max}$ sont des fonctions de la fraction volumique (χ) de CH_4 dans le syngas et du ratio H_2/CO normalisé $R' = \chi_{H_2}/(\chi_{H_2} + \chi_{CO})$:

$$S_{u,max} = 2,1 \exp(-5,9 \chi_{CH_4})(R' + 0,5) + 1,4 \exp(-3,97 \chi_{CH_4}) + 0,4 \quad (3.4)$$

$$\varphi_{Su=max} = 0,905 \exp(-13,4 \chi_{CH_4})(R' - 0,5) + 1,05 \exp(-7 \chi_{CH_4}) + 1,07 \quad (3.5)$$

$$B = \left[-10,5(\chi_{CH_4} - 0,2)^2 + 1,5 \right] R' + 3,1 \chi_{CH_4} + 0,035 \quad (3.6)$$

Finalement, les constantes a et c de l'équation (3.3) permettent respectivement d'ajuster S_u en fonction de la température initiale du mélange et de représenter l'effet de la dilution. Ces deux constantes sont des fonctions de φ et de la fraction volumique de CH_4 et sont calculées grâce aux équations (3.7) et (3.8) respectivement.

$$a = (1,28 + 0,24\chi_{CH_4}) + 0,54 \left(\varphi - (1,85 - 3,45\chi_{CH_4}) \right)^2 \quad (3.7)$$

$$c = 0,028 \exp[(2,5\chi_{CH_4}^2 + 1)\varphi + 0,5] + 1,23 \quad (3.8)$$

Les équations proposées (équations (3.4) à (3.8)) ont été établies en utilisant la méthode des moindres carrés avec l'algorithme de régression non linéaire multi-variables du logiciel Statgraphics Centurion XVI (StatPoint Technologies Inc., 2010). Les derniers termes des équations (3.4) et (3.5) sont respectivement $S_{u,max}$ et $\varphi_{S_{u,max}}$ du méthane.

Cette corrélation a été validée sur l'ensemble des données expérimentales obtenues avec les carburants présentés au Tableau 3.1. Elle est valide pour des mélanges à pression atmosphérique ayant une température initiale de 295 K. Pour les carburants possédant 5% de CH₄ et moins, elle est valide sur la plage de richesse allant de 0,7 à 2,2. Une augmentation de la concentration de CH₄ réduit cette plage de richesse à cause de la plus faible limite d'inflammabilité du méthane. La corrélation est valide pour des carburants ayant jusqu'à 40% (volume) de CO₂. Elle peut aussi être utilisée pour des températures initiales de mélanges allant jusqu'à 450 K, mais alors la plage de validité en richesse est restreinte à $0,8 \leq \varphi \leq 1,2$. Le Tableau 3.3 illustre ces plages de validité de la corrélation. La Figure 3.13 illustre la concordance entre les résultats expérimentaux et les résultats obtenus avec la corrélation et montre que coefficient de corrélation atteint 0,97.

Tableau 3.3 Plage de validité de la corrélation

Carburant de base	Plage de CO ₂	Plage de CH ₄	Plage de richesse à 295 K	Plage de richesse à 300 – 450 K
H ₂ /CO	0 – 40%	0 – 5%	0,7 – 2,2	0,8 – 1,2
		5 – 20%	0,7 – 2,0	
		20 – 50%	0,7 – 1,5	

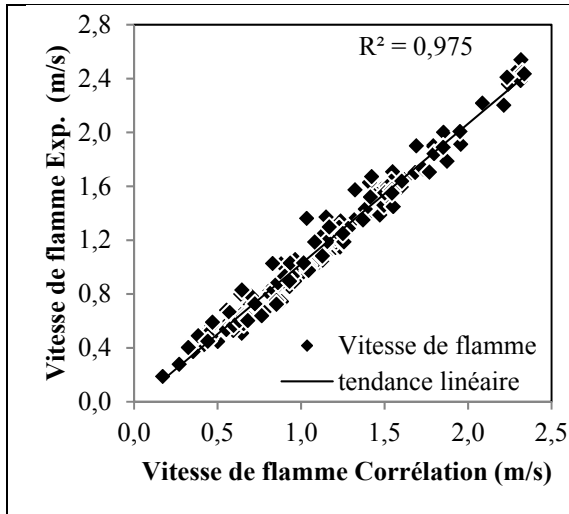


Figure 3.13 Comparaison entre la vitesse de flamme déterminée par la corrélation et la vitesse expérimentale

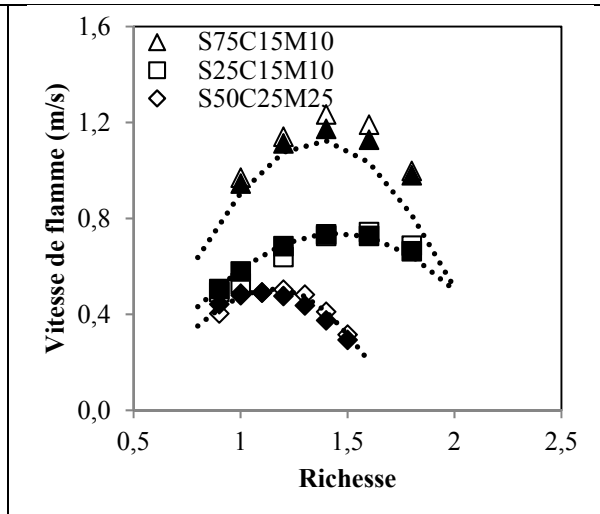


Figure 3.14 Validation de la robustesse de la corrélation. Symboles pleins: corrélation
Symboles vides: expérimental,
lignes pointillées : GRI-Mech modifié

Jusqu'à présent, la corrélation proposée a été créée et validée pour des carburants à deux combustibles H_2/CO et pour les carburants à trois combustibles $H_2/CO/CH_4$ et $H_2/CO/CO_2$. Afin de vérifier la robustesse de la corrélation sur des carburants à quatre combustibles, la vitesse de trois carburants H_2/CO dilués simultanément avec du CO_2 et du CH_4 a été mesurée. Le Tableau 3.4 présente la composition de ces carburants tandis que la Figure 3.14 compare les résultats expérimentaux à ceux de la corrélation. Les vitesses calculées avec la corrélation concordent bien avec les vitesses mesurées, l'écart maximal n'étant que de 10%.

Tableau 3.4 Composition des trois carburants utilisés pour vérifier la robustesse de la corrélation

Étiquette	CO	H ₂	CH ₄	CO ₂
S25C15M10	56,25	18,75	10	15
S50C25M25	25	25	25	25
S75C15M10	18,75	56,25	10	15

3.4 Conclusion

La vitesse laminaire de flamme de carburants syngas-méthane ($H_2/CO/CO_2/CH_4$) a été mesurée sur une grande plage de composition et de richesse. La température initiale a été variée de 295 K à 450 K. Les résultats montrent que les vitesses expérimentales des carburants sans méthane sont correctement prédites par les cinétiques GRI-Mech 3.0 et Davis, à l'exception des carburants $H_2/CO/CO_2$ pauvres, pour lesquels la vitesse de flamme est sous-estimée. L'ajout de méthane dans un syngas cause à la fois une réduction de S_u et un déplacement, vers les mélanges moins riches, de la richesse à laquelle S_u atteint son maximum. Bien qu'ils soient précis avant l'atteinte de ce maximum de vitesse, ni GRI-Mech 3.0 ni USC Mech II ne sont en mesure de prédire correctement le déplacement du maximum. Toutefois, une nouvelle version de la cinétique GRI-Mech 3.0, modifiée selon les recommandations de Vu et al. (2011b), permet de correctement prédire les vitesses et le déplacement du maximum des carburants syngas-méthane. Toutefois, une validation est suggérée afin de s'assurer que les cibles de validations originales soient toujours correctement prédites après cette modification. Toutes les cinétiques testées surestiment le taux de croissance de S_u en fonction de la température des syngas pur, les S_u prédits devenant supérieurs aux S_u mesurés dès 400 K. Dans le cas d'un ajout de CO_2 , cette surestimation demeure présente pour les mélanges riches, mais les mélanges pauvres sont plutôt sous-estimés. Dans le cas d'un ajout de méthane au syngas, le taux de croissance de S_u en fonction de la température initiale demeure surestimé quand la concentration en CH_4 est faible (5%), mais il est sous-estimé dans le mélange S50M40, les S_u prédits devenant inférieurs aux S_u mesurés à 450 K.

L'ajout de CO_2 cause aussi un déplacement du $S_{u,max}$ vers les mélanges moins riches. Ceci est causé par un affaiblissement de l'influence de la diffusivité thermique sur la vitesse de flamme, ce qui donne une influence plus prépondérante à la température de flamme. Il est aussi montré que l'augmentation de la température initiale réduit l'influence du CO_2 sur la vitesse. Finalement, ce chapitre propose une corrélation permettant de prédire la vitesse de flamme de carburants $H_2/CO/CO_2/CH_4$ basée sur la proportion de chacun de ces constituants, sur la richesse et sur la température initiale.

CHAPITRE 4

NOMBRE DE LEWIS

Comme mentionné dans la revue de littérature, la vitesse de flamme déterminée au chapitre précédent n'est valide que tant que la flamme demeure laminaire. Or une flamme, même dans un environnement stable, peut se déstabiliser et quitter le régime laminaire. L'un des mécanismes d'instabilité dépend du ratio entre les diffusivités thermique et massique, représenté par le nombre de Lewis (Le). Grâce au transfert de chaleur, la chaleur dégagée par la flamme réchauffe les gaz frais jusqu'à la température d'activation permettant aux réactions chimiques de se dérouler ou démarrer. Pendant ce temps, le transfert de masse alimente continuellement la flamme en réactif. Le déséquilibre entre les diffusions thermique et massique se nomme non-equidiffusivité (Law, 2006). La flamme dont le Le est inférieur à la valeur critique Le^* , (d'une valeur légèrement inférieure à 1) (Gu, Huang, Wu et Li, 2010; Jomaas et al., 2007; Ranga Dinesh, Shalaby, Luo, van Oijen et Thévenin, 2016; Sun et al., 2012) est inconditionnellement instable. Au contraire, quand Le est supérieur à Le^* , les phénomènes diffusifs aident à stabiliser la flamme. Il est donc important de connaître précisément la valeur du Le de la flamme pour pouvoir déterminer si elle risque d'être instable.

Le calcul du nombre de Lewis est simple pour un mélange de réactifs contenant un combustible unique. Il s'agit de calculer la diffusivité thermique (α) du mélange et de la diviser par la diffusivité massique (D) du réactif déficient. Puisqu'il n'y a qu'un seul combustible, il n'y a qu'un seul réactif déficient : le combustible dans le cas d'un mélange pauvre et le O_2 dans le cas d'un mélange riche. Toutefois, le calcul se complexifie dans un carburant comprenant plusieurs combustibles puisque les propriétés de diffusion de chacun des combustibles doivent être prises en compte. L'influence collective des caractéristiques individuelles de diffusion est décrite par le nombre de Lewis effectif (Le_{eff}), qui décrit la diffusion du carburant comme s'il agissait un combustible unique. Comme il n'y a présentement pas de consensus sur la façon de procéder, trois méthodes coexistent dans la

littérature afin de déterminer le Le_{eff} d'un mélange de combustibles. La récente étude de Bouvet et al. (2013), présentée à la section 1.4, a permis d'identifier une formulation apte à prédire le Le_{eff} des carburants H_2 -alcanes, mais seulement pour des mélanges pauvres. Cependant, ils n'ont pas été en mesure d'identifier une formule permettant de calculer le Le_{eff} des syngas. L'objectif de ce chapitre est d'identifier une formulation prédisant le Le_{eff} des syngas qui soit valide dans les mélanges pauvres ainsi que dans les mélanges riches. Pour ce faire, de nouvelles interprétations du calcul du Le seront testées et les résultats seront comparés à des Le expérimentaux issus de deux techniques de mesure expérimentale supplémentaires. De plus, la validation du calcul du Le sera étendue aux mélanges riches et aux carburants à trois combustibles $H_2/CO/CH_4$ et $H_2/CO/CO_2$.

La première section de ce chapitre présente les nombreuses méthodes de calcul empirique du Le . La section 4.2 présente les techniques d'extraction expérimentale du nombre de Lewis d'une flamme en expansion sphérique. Ces techniques sont comparées à la section 4.3 sur des carburants purs afin d'identifier la technique la plus précise. La section 4.4 compare les Le expérimentaux issus de cette technique à plus de 10 méthodes de calcul empirique du Le . Finalement, le chapitre se termine en identifiant une méthodologie afin d'estimer le Le_{eff} des syngas. Cette méthodologie a fait l'objet d'une publication (Lapalme, Lemaire et Seers, 2017).

4.1 Procédure du calcul empirique du nombre de Lewis

Par définition, le nombre de Lewis (voir l'équation (4.1)) est le ratio de la diffusivité thermique (α) de l'ensemble des réactifs sur la diffusivité massique (D_{ij}) du réactif déficient, qui se trouve à être le carburant ou le O_2 dans les mélanges pauvres et riches respectivement. Il s'agit donc en l'apparence d'un calcul simple entre deux propriétés mesurées à la température initiale du mélange.

$$Le_i = \frac{\alpha}{D_{ij}} \quad (4.1)$$

La réalité est toutefois plus complexe. Tout d'abord, la combustion a généralement lieu dans l'air ce qui implique qu'au moins trois espèces, soit le combustible ainsi que le O_2 et le N_2 de l'air, sont impliquées. Le réactif déficient se diffuse donc vers deux gaz excédents. Le meilleur moyen de calculer le coefficient de diffusion massique est évalué dans la section 4.1.1 qui suit. De plus, quand deux combustibles ou plus sont combinés pour former un carburant, comme dans les syngas, et que la combustion se déroule dans un mélange pauvre, le calcul de Le est complexifié par le fait qu'il y a plus d'un réactif déficient. De tels mélanges requièrent le calcul du Le de chaque combustible i , qui sera dénoté Le_i tout au long du texte.

Ces Le_i peuvent être calculés par l'une des trois méthodes présentées à la section 4.1.2. Toutefois, il n'y a qu'un seul réactif déficient dans les mélanges riches: l'oxydant O_2 . Même quand O_2 fait face à plusieurs combustibles, Le_{O_2} est communément calculé pour le mélange entier. Pourtant, il est connu que les Le du CH_4 et du H_2 dans des mélanges riches diffèrent, et donc que Le_{O_2} change en fonction du combustible (Clarke, 2002; Law et Sung, 2000). Cette thèse comparera le calcul traditionnel du Le_{O_2} à celui dans lequel O_2 , à l'aide des méthodes présentées à la section 4.1.2, se diffuse vers chacun des combustibles i (ainsi que vers le N_2 de l'air).

Une fois que les Le_i des combustibles et de l'oxydant sont connus, ils sont mélangés (chacun de leur côté) selon les méthodes rapportées dans la littérature et résumées à la section 4.1.3 afin de déterminer le nombre de Lewis du carburant et le nombre de Lewis de l'oxydant. Finalement, il a parfois été proposé de corriger le Le du mélange afin que Le_{eff} prenne en compte l'influence du réactif excédant (carburant ou oxydant selon la richesse du mélange). Cette méthode est présentée à la section 4.1.4.

4.1.1 Diffusivité massique

La majorité des études des mélanges air-carburant considèrent que les réactifs sont peu abondant comparativement à l'azote contenu dans l'air (Addabbo et al., 2002).

De ce fait, j représente fréquemment seulement le N_2 , et ainsi D_{ij} devient le coefficient de diffusion binaire du réactif vers N_2 (D_{i-N_2}). Cette hypothèse est vraisemblable pour les mélanges alcanes-air qui ont un ratio air/carburant massique élevé (de l'ordre de 15 pour 1). Par contre, la validité de l'hypothèse est plus douteuse dans les mélanges à base de CO-air, où le ratio air/carburant massique est particulièrement faible (de l'ordre de 2,4). Conséquemment, un coefficient de diffusion massique moyenné ($D_{i,moy}$), présenté à l'équation (4.2) (Burali, Lapointe, Bobbitt, Blanquart et Xuan, 2016; Reaction Design, 2005) où Y est la fraction massique d'une espèce i dans le mélange air-carburant et χ est la fraction molaire de chaque espèce s , a aussi été calculé.

$$D_{i,moy} = (1 - Y_{i,mix}) \left(\sum_{\substack{s=1 \\ s \neq i}}^N \frac{\chi_s}{D_{is}} \right)^{-1} \quad (4.2)$$

Une comparaison détaillée du Le calculé en utilisant D_{i-N_2} et $D_{i,moy}$ démontre que les résultats obtenus avec $D_{i,moy}$ sont en meilleur accord avec les résultats expérimentaux pour les mélanges CH_4 -air, H_2 -air, et plus particulièrement pour les mélanges CO-air. La Figure 4.1 montre que ce meilleur accord est particulièrement important pour les mélanges H_2 /CO-air. La différence n'est pas aussi notable dans les mélanges H_2 / CH_4 -air, mais la prédiction des résultats expérimentaux demeure plus précise en utilisant $D_{i,moy}$. Les notations H, D et V de la Figure 4.1 font référence aux trois règles de mélange présentées à la section 4.1.3. La figure montre que $D_{i,moy}$ est la méthode la plus précise indépendamment de la règle de mélange choisie. C'est pourquoi $D_{i,moy}$ est recommandé pour tous les calculs du nombre de Lewis.

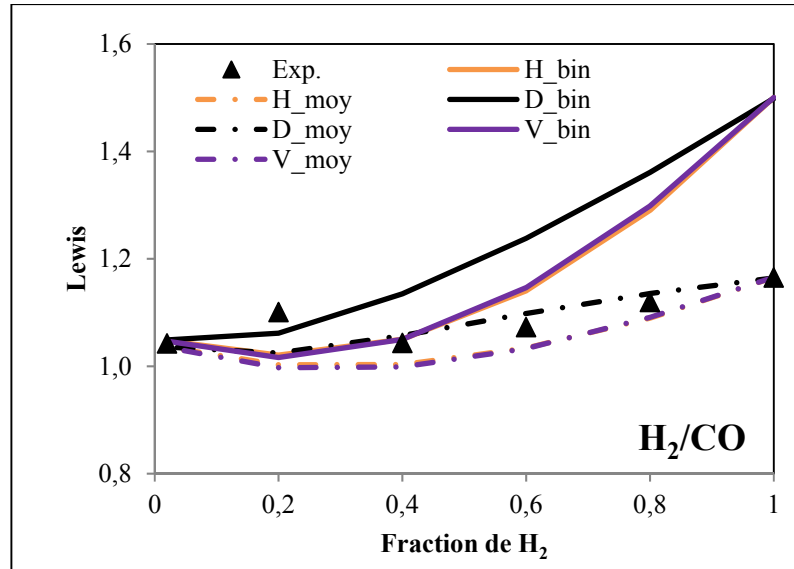


Figure 4.1 Comparaison entre les Le obtenus en utilisant la diffusion moyennée et la diffusion binaire

4.1.2 Calcul du Le_i

Dans la majorité des études (Ai, Zhou, Chen et Kong, 2014; Bouvet et al., 2013; Dinkelacker, Manickam et Muppala, 2011; Law et al., 2005; Muppala, Nakahara, Aluri, Kido, Wen et al., 2009), Le_i est calculé en divisant le α de l'ensemble du mélange (tous les combustibles plus l'air) par le $D_{i,moy}$ du combustible i se diffusant vers tout le reste du mélange. Dans le présent travail, cette méthode est dénotée $Le_{i,\alpha}$.

Une seconde approche, proposée par Tang et al. (2009), repose sur le calcul de α_i et $D_{i,moy}$ de chaque combustible i en considérant que le mélange air-carburant n'est formé que du combustible i et de l'air (et des diluants s'il y en a). De plus, α_i et $D_{i,moy}$ sont calculés à une richesse φ_i représentative de la proportion d'air disponible pour brûler ce combustible i , tel qu'exprimé par l'équation (4.3):

$$\varphi_i = \frac{(\chi_i/\chi_{air})_{actual}}{(\chi_f/\chi_{air})_{stoich}} \quad (4.3)$$

où χ_f et χ_{air} sont les fractions molaires de tous les combustibles réunis et de l'air respectivement. Cette méthode, identifiée Le_{i,ϕ_i} , est utilisée dans la littérature (Hu et al., 2009c; Song, Jung, Park, Kwon, Kim et al., 2013; Vu et al., 2010), mais toujours combinée à l'utilisation de la formule de mélange basée sur le dégagement de chaleur présentée à la section 4.1.3. Dans cette thèse, il est de plus proposé d'utiliser cette méthodologie pour calculer le Le_{eff} de l'oxydant par rapport à chaque combustible i avant de les mélanger avec l'une des règles de mélange de la section 4.1.3.

Finalement, la troisième méthode pour calculer Le_i , nommée $Le_{i,\phi}$, considère aussi que le mélange air-carburant n'est composé que du combustible i et de l'air, mais emploie la richesse initiale du mélange. La quantité de diluant associée à chaque combustible i est proportionnelle à la concentration dudit combustible i dans le carburant.

4.1.3 Formules de mélange des Le_i pour les carburants à plusieurs combustibles

L'objectif de ce chapitre est d'identifier la meilleure façon de calculer Le_{eff} dans un carburant à plusieurs combustibles. Ceci dépend fortement de la technique utilisée afin de moyenner et combiner les Le_i . Les trois formules de mélange proposées dans la littérature sont décrites ci-dessous et leurs équations respectives sont résumées dans le Tableau 4.1.

Avec la première formulation (Muppala et al., 2009), basée sur le volume (Le_v), le Le_{eff} est le résultat de la moyenne des Le pondérée par la fraction molaire (χ_i) de chaque combustible i présent dans le carburant (équation (4.5)). Les auteurs réemploient ici la méthode utilisée pour calculer plusieurs propriétés des mélanges, dont la masse volumique. Toutefois, il importe de noter que Muppala et al. (2009) concluent, sur la base de leurs résultats de simulations numériques de la vitesse de flamme turbulente, que leur formulation est trop simplificatrice.

La deuxième formulation, basée sur la diffusion (Le_D), provient des travaux de Dinkelacker et al. (2011) qui ont émis l'hypothèse que la courbure d'un front de flamme laminaire causera

un enrichissement local du mélange air-carburant. L'accroissement du taux de réaction résultant de cet enrichissement a été modélisé par une diffusion massique effective, qui a par la suite été utilisée avec le α du mélange pour obtenir Le_D (équation (4.6)).

La troisième formulation, proposée par Law et al. (2005), a été développée depuis la théorie asymptotique. Avec cette formulation (Le_H), présentée par l'équation (4.7)), Le_{eff} est la moyenne des Le_i pondérée par le dégagement de chaleur normalisé (q_i) associé à la réaction de chaque combustible. L'équation (4.4) définit q_i en fonction de Q_i et Y_i , qui sont respectivement la chaleur de réaction et la fraction massique du combustible i , et de C_p , qui est la capacité thermique massique du mélange à la température des gaz frais T_u . Cette formulation a été utilisée abondamment pour des carburants contenant jusqu'à quatre combustibles (Bouvet et al., 2013; Burbano et al., 2011; Dinkelacker et al., 2011; Hu et al., 2009c; Prathap et al., 2012; Tang, Huang et Law, 2011; Tang et al., 2009; Vu et al., 2011a; Vu et al., 2010; Vu et al., 2009).

$$q_i = \frac{Q_i Y_i}{C_p T_u} \quad (4.4)$$

Tableau 4.1 Formulations pour le calcul du nombre de Lewis effectif

Nom	Formule	
basé sur le volume (V)	$Le_V = \sum_{i=1}^f \chi_i Le_i$	(4.5)
basé sur la diffusion (D)	$Le_D = \frac{\alpha}{\sum_{i=1}^f \chi_i D_{ij}}$	(4.6)
basé sur le dégagement de chaleur (H)	$Le_H = 1 + \frac{\sum_{i=1}^f q_i (Le_i - 1)}{\sum_{i=1}^f q_i}$	(4.7)

4.1.4 Combinaison du carburant et de l'oxydant

Une analyse effectuée par Addabbo et al. (2002) a démontré que le Le_{eff} du mélange air-carburant est la combinaison du Le_{eff} du carburant avec le Le_{eff} de l'oxydant, chacun ayant été calculé séparément en suivant la procédure détaillée en 4.1.2 et 4.1.3. Cette combinaison, présentée à l'équation (4.8), est nommée Le_{f/O_2} . Bouvet et al. (2013) ont observé que l'utilisation de Le_{f/O_2} détériorait l'accord entre leurs résultats empiriques et expérimentaux, mais leur étude se limitait aux mélanges pauvres ($\varphi \leq 0,8$). Puisque la présente étude s'intéresse aussi aux mélanges stœchiométrique et riches, Le_{f/O_2} proposée par Addabbo et al. (2002) et Bechtold et Matalon (2001) puis utilisée par d'autres auteurs (Burbano et al., 2011; Keppeler et Pfitzner, 2015; Vu et al., 2011a) sera réévaluée.

$$Le_{f/O_2} = 1 + \frac{(Le_{exc} - 1) + (Le_{def} - 1)A_1}{1 + A_1} \quad (4.8)$$

Dans cette équation, Le_{exc} et Le_{def} sont les nombres de Lewis du réactif excédent et déficient respectivement. Le paramètre A_1 représente la force du mélange et est obtenu par $A_1 = 1 + Ze(\Phi - 1)$, où Φ est le ratio entre les masses du réactif excédent et du réactif déficient dans le mélange de gaz frais relativement à la richesse du mélange ($\Phi = 1/\varphi$ pour $\varphi \leq 1$ et $\Phi = \varphi$ pour $\varphi > 1$) (Hu et al., 2009c; Vu et al., 2010). Finalement, Ze est le nombre de Zel'dovich tel que défini à la section 2.3.

4.1.5 Résumé de la procédure de calcul du Le_{eff}

Les sections précédentes présentaient les étapes à suivre afin de déterminer le Le_{eff} d'un mélange air-carburant donné. Premièrement, une méthode de calcul du Le_i (section 4.1.2) est choisie et appliquée à chaque combustible i . Puis, les Le_i sont mélangés en utilisant l'une des équations du Tableau 4.1 de la section 4.1.3 afin d'obtenir un Le_{fuel} et un Le_{O_2} . Le_{eff} peut valoir directement Le_{fuel} ou Le_{O_2} , ou peut nécessiter la combinaison des deux par l'équation Le_{f/O_2} de la section 4.1.4. La Figure 4.2 donne un aperçu graphique des possibilités à chacune de ces étapes ainsi que des interactions entre les étapes.

4.2 Procédure expérimentale

Le montage expérimental a été décrit et validé en détail à la section 2.1.2. Ce montage est utilisé afin de déterminer expérimentalement le nombre de Lewis d'une flamme. Cette valeur expérimentale sera par la suite comparée aux résultats calculés suivant la procédure empirique de la section précédente. Cette section présente dans un premier temps les méthodes permettant de déterminer expérimentalement le nombre de Lewis. Un exemple détaillé du calcul de l'incertitude expérimentale liée à ces méthodes est ensuite donné.

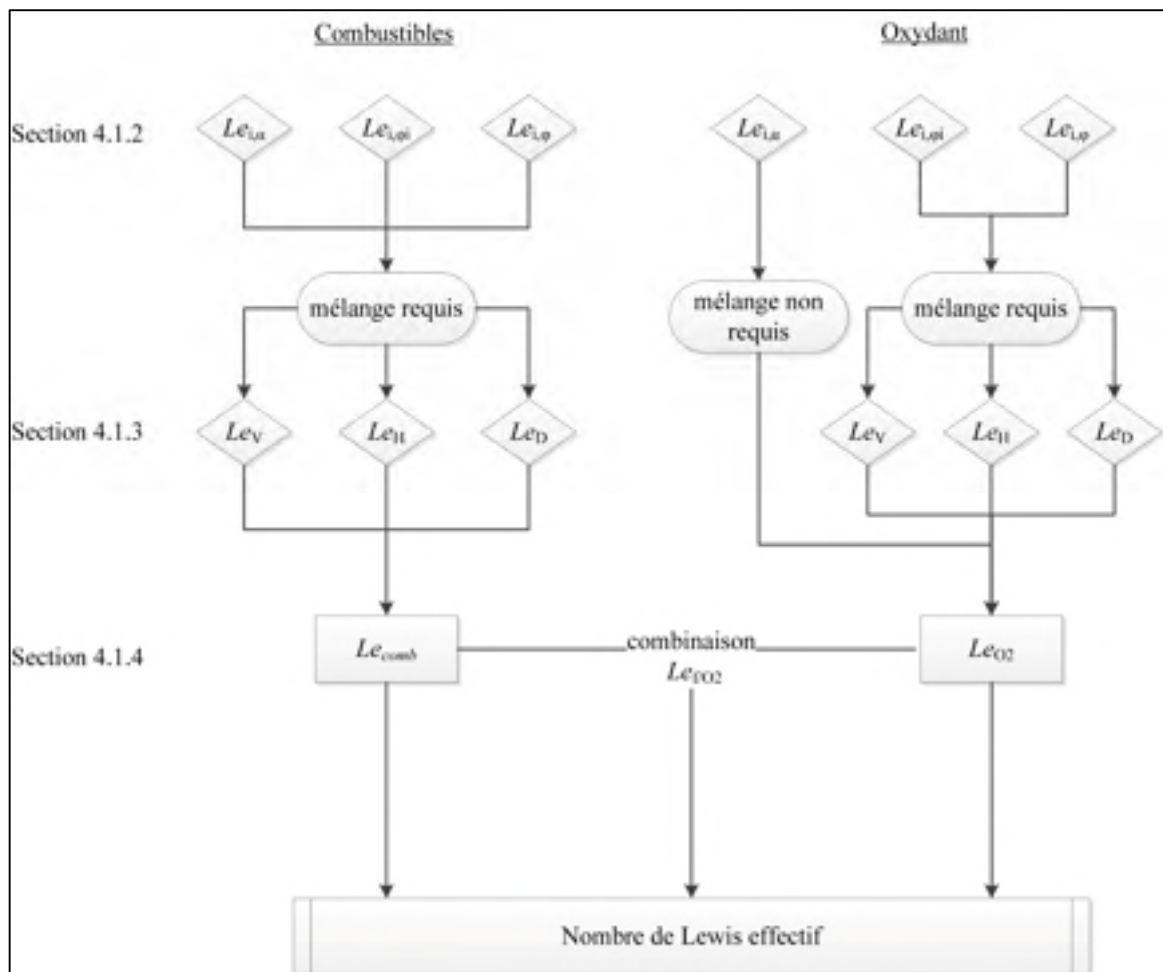


Figure 4.2 Résumé de la procédure du calcul empirique du nombre de Lewis

4.2.1 Extraction expérimentale du Le

Le nombre de Lewis est un paramètre représentant le transport des réactifs frais. Toutefois, avant la zone de réaction, les réactifs sont préchauffés par la flamme, ce qui active des réactions produisant des espèces intermédiaires. Ces espèces ont des diffusivités propres qui, selon Law et Sung (2000), peuvent manifester leur influence par certains phénomènes nonequidiffusifs. Conséquemment, trois méthodes d'extraction ont été développées afin de déterminer expérimentalement Le depuis une flamme. Ces méthodes sont toute fonction des quatre mêmes paramètres: la longueur de Markstein (L_b), le nombre de Zel'dovich (Ze), l'épaisseur de flamme (l_f) et le ratio d'expansion thermique (σ). De ces paramètres, seule L_b est déterminée expérimentalement, avec la bombe à combustion (section 2.1.2), grâce aux équations (2.4) et (2.5). Pour leur part, Ze et σ sont déterminés numériquement avec la méthodologie de la section 2.3, en utilisant la cinétique GRI-Mech modifiée.

Quant à l_f , il existe deux définitions couramment utilisées pour la calculer. La première définition (équation (4.9)), qui vient d'une analyse cinétique (donc identifiée l_{fc}) de la flamme laminaire (Law, 2006; Turns, 2011), est fréquemment utilisée (Law et al., 2005; Matalon, 2009; Vu et al., 2011b). C'est celle qui a été choisie par Bouvet et al. (2013) pour leur étude de Le_{eff} . En suivant les recommandations de Law et al. (2005), le ratio de la conductivité thermique et de la capacité thermique massique (k/C_p) a été évalué pour le mélange air-carburant avant combustion à la température moyenne entre les gaz frais (T_u) et les gaz brûlés (T_{ad}).

$$l_{fc} = \frac{k}{\rho_u C_p S_u^0} \quad (4.9)$$

Toutefois, certains auteurs (Lafay, Renou, Cabot et Boukhalfa, 2008; Law et Sung, 2000; Sun et al., 1999a) considèrent que le l_f résultant de cette définition est incertain à cause de l'arbitraire dans le choix de la température à laquelle k/C_p est évalué et parce qu'elle dépend

de S_u^0 . Par conséquent, ces auteurs préfèrent utiliser la méthode du gradient (l_{fG} ; équation (4.10)) pour déterminer l_f .

$$l_{fG} = \frac{T_{ad} - T_u}{(dT/dx)_{max}} \quad (4.10)$$

Dans les équations (4.9) et (4.10), S_u^0 , T_{ad} et le gradient maximal de température $(dT/dx)_{max}$, trouvé grâce au profil de température, sont des solutions de calculs exécutés par le logiciel PREMIX. Ces deux définitions de l_f seront comparées et évaluées dans la section 4.3, qui présente les résultats de l'extraction expérimentale de Le .

La première méthode expérimentale d'extraction du Le , nommée ici Le_{Law} et présentée à l'équation (4.11), a été développée par Law et Sung (2000) grâce à une analyse intégrale de la flamme étirée.). Notez que cette méthode est fonction de la longueur de Markstein des gaz frais (L_u), qui est déterminé depuis L_b grâce à l'équation (4.13)), et de $\bar{\alpha}$, qui est défini à l'équation (4.12).

$$Le_{Law} = 1 + \frac{2(1 - 1/\sigma)}{Ze(1/\sigma)(1 - \bar{\alpha})} \left[\frac{L_u}{l_f} + (1 - 1/\sigma) - \left(\frac{1 - \bar{\alpha}}{1 - 1/\sigma} \right) \right] \quad (4.11)$$

$$\bar{\alpha} = 1 + \ln \left[\frac{1}{\sigma} + \left(1 - \frac{1}{\sigma} \right) \exp(-1) \right] \quad (4.12)$$

$$L_u = \frac{L_b}{\sigma} + \left(\bar{\alpha} - \frac{1}{\sigma} \right) l_f \quad (4.13)$$

La seconde méthode, présentée par Bechtold et Matalon (Bechtold et Matalon, 2001; Jomaas et al., 2007), est donnée par l'équation (4.14) sous le nom Le_{BM} . Elle a été développée en utilisant la théorie asymptotique étendue afin d'obtenir une dépendance explicite à la richesse. Conséquemment, elle demeure valide pour les conditions stœchiométriques. Cette méthode a été employée par Jomaas et al. (2007) pour extraire les Le de mélanges H₂-air et C₂H₂-air sur une large plage de richesses.

$$Le_{BM} = 1 + \left[\frac{L_b}{l_f} - \frac{2}{\sqrt{\sigma} + 1} \right] \left[\frac{2Ze}{\sigma - 1} \left\{ \sqrt{\sigma} - 1 - \ln \left(\frac{1}{2} (\sqrt{\sigma} + 1) \right) \right\} \right]^{-1} \quad (4.14)$$

Cette formule a toutefois été développée en prenant comme hypothèse que la flamme n'est qu'une simple interface et ne donne des solutions que pour les situations à l'équilibre loin en amont ou en aval de la flamme (Giannakopoulos, Gatzoulis, Frouzakis, Matalon et Tomboulides, 2015). Une solution uniformément valide au travers tout le front de flamme a récemment été développée (Giannakopoulos et al., 2015). Elle est basée sur le calcul des propriétés de flamme sur une isotherme proche du côté des gaz brûlés. Quelques Le ont été recalculés avec cette nouvelle méthodologie. Les résultats se sont avérés être similaires à ceux obtenus avec l'équation (4.14). Conséquemment, la méthode plus directe de Bechtold et Matalon (2001) a été retenue pour ce travail.

La troisième méthode, présentée à l'équation (4.15), dérive d'une analyse intégrale des paramètres fondamentaux d'une flamme réalisée à l'origine sur une flamme à contre-courant (Law, 2006). Cette méthode a été utilisée récemment par Chen (c'est pourquoi elle est nommée ici Le_{Chen}) dans des analyses théoriques de la flamme en expansion sphérique (Chen, 2011; Chen et al., 2009). C'est la méthode retenue par Bouvet et al. (2013) dans leur analyse des méthodes de calcul du Le .

$$Le_{Chen} = \left[\frac{L_b}{\sigma l_f} - \frac{Ze}{2} \right]^{-1} \left[1 - \frac{Ze}{2} \right] \quad (4.15)$$

4.2.2 Incertitude expérimentale

La méthode de calcul de l'incertitude expérimentale décrite à la section 2.2 a été reprise ici pour déterminer l'incertitude sur la richesse et le nombre de Lewis. Comme pour le CHAPITRE 3, le détail du calcul de l'incertitude sur la richesse a été présenté à l'ANNEXE I. Les mêmes débitmètres ayant les mêmes sources d'incertitude sont réutilisés pour les expériences menées dans la bombe à combustion. L'incertitude sur la richesse est donc similaire à celle calculée au CHAPITRE 3 et varie entre 5 et 24%.

L'incertitude sur Le est le résultat de la propagation des incertitudes relevées sur les paramètres utilisés dans les équations (4.11), (4.14) et (4.15). Ze et σ sont des valeurs obtenues via CHEMKIN en appliquant les définitions théoriques. L'incertitude ne vient que de la cinétique chimique utilisée. Or, celle-ci est validée et publiée sans mentionner l'incertitude. L'épaisseur de flamme l_f est aussi calculée avec des résultats CHEMKIN, sauf l_{fc} qui requiert aussi des valeurs pour k , ρ et C_p . Ces propriétés sont calculées avec des corrélations colligées dans Yaw (2012, 2013, 2014), qui ne précise pas d'incertitude. Aucune incertitude n'est donc associée à ces paramètres. Il ne reste que l'incertitude sur L_b , qui est un paramètre mesuré expérimentalement à l'aide des équations (2.4) ou (2.5). Dans ces équations, L_b représente le taux de variation de la vitesse de la flamme (S_b) en fonction de l'étirement de la flamme (κ). Ces deux paramètres dépendent du rayon de la flamme tel que déterminé selon la méthodologie présentée à la section 2.1.2 et du grandissement permettant la conversion du rayon de pixel à millimètre. Le détail du calcul de l'incertitude du L_b et de sa propagation sur Le est présenté à l'ANNEXE III. L'incertitude sur le grandissement est de l'ordre du 1%. Pour sa part, l'incertitude sur le rayon est d'environ 8% à la naissance de la flamme ($R < 5$ mm) et se stabilise à environ 2% quand le rayon dépasse 9 mm. Ceci se répercute, pour l'ensemble des tests, en une incertitude sur L_b variant entre 1,5% et 15%, ce qui se traduit par une incertitude sur Le variant entre 0,3% et 3,8%. L'incertitude de chacun des tests effectués est présentée à l'ANNEXE V.

4.3 Évaluation des méthodes d'extraction

Les trois méthodes d'extraction du Le présentées plus haut sont utilisées dans la littérature de manière indifférenciée. Bien que ces trois méthodes donnent des résultats différents pour un même point de mesure, aucune étude n'a été effectuée pour démontrer la supériorité d'une méthode par rapport aux autres. La première partie de ce travail consiste donc à identifier la méthode donnant les meilleurs résultats. Pour ce faire, les Le expérimentaux seront extraits de flammes de carburants purs (H_2 , CH_4 et CO) afin d'être comparés aux Le théoriques, qui peuvent être calculés de façon précise puisque les règles de mélange ne sont pas requises. À cause de la dépendance envers l_f des trois méthodes d'extraction du Le expérimental, un total

de six expressions sont évaluées à ce point, dans des mélanges H₂-air, CH₄-air et CO-air. À chaque fois, L_b est déterminé expérimentalement tandis que σ , Ze et l_f sont issus de solutions de CHEMKIN.

4.3.1 Mélanges H₂-air

Les résultats pour les mélanges H₂-air sont présentés à la Figure 4.3-A, où les deux définitions de l_f sont utilisées avec les équations (4.11) à (4.15), et à la Figure 4.3-B, où seuls les résultats obtenus avec l_{fG} sont montrés. Les petits traits horizontaux présents de part et d'autre des graphiques indiquent les valeurs limites (minimale et maximale) théoriquement attendues de Le pour les mélanges extrêmement pauvres et extrêmement riches. Ces valeurs limites sont estimées en divisant la diffusivité thermique du mélange par la diffusivité massique moyennée du H₂ et du O₂ vers le mélange pauvre et riche respectivement. La limite pauvre calculée ici est en accord avec celle rapportée par Hawkes et Chen (2004) tandis que les limites pauvre et riche sont similaires à celles de Law et Sung (2000). Les Le extraits des L_b de Hu et al. (2009a) et de Hu et al. (2009b), qui représentent les L_b minimum et maximum trouvés dans la littérature, ont été ajoutés à la Figure 4.3-B. Les L_b de la présente étude se situent entre ces deux extremums, et sont donc cohérents avec la littérature.

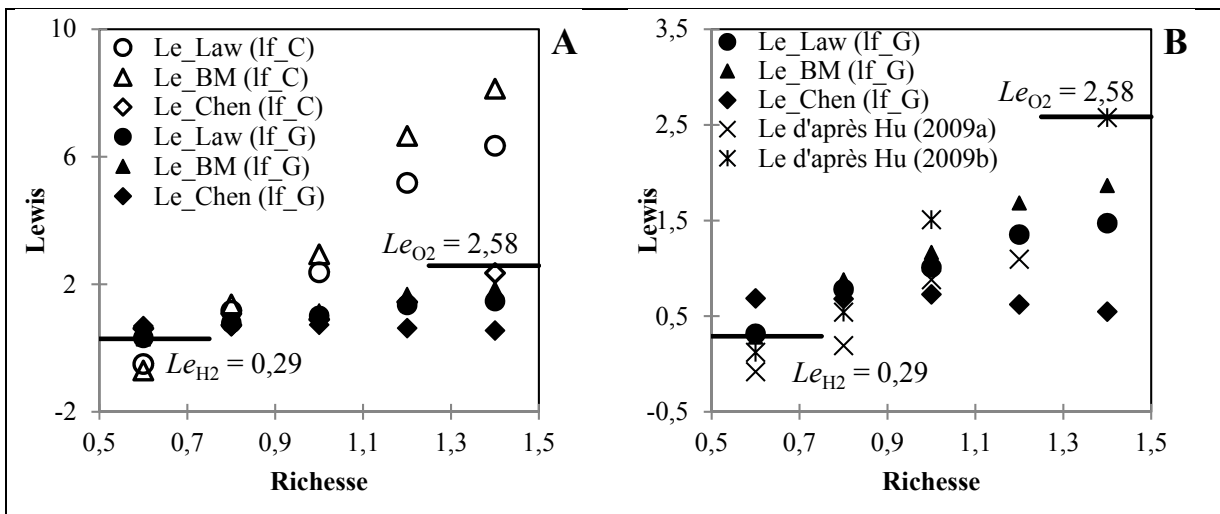


Figure 4.3 Nombre de Lewis expérimental pour les mélanges H₂-air, avec les limites théoriques en mélanges pauvres et riches. A : Résultats obtenus en considérant les deux définitions de l'épaisseur de flamme. B : Résultats proches des limites théoriques

La Figure 4.3-A montre clairement l'impact du choix de la définition de l_f sur l'extraction de Le . La définition l_{fC} (équation (4.9)), lorsqu'utilisée avec Le_{Law} et Le_{BM} , donne des résultats beaucoup plus élevés que la limite dans les mélanges riches, et donne des Le négatif à $\varphi = 0,6$. Lorsqu'utilisée avec Le_{Chen} , l_{fC} donne un Le légèrement plus faible que la limite riche. Toutefois, Le_{Chen} présente une tendance à la hausse à la fin de la plage de richesse analysée ici, laissant présager des Le plus élevés que la limite riche pour $\varphi > 1,4$. C'est pourquoi l'utilisation de l_{fG} , dont les résultats sont reproduits à la Figure 4.3-B pour permettre une meilleure comparaison, est privilégiée. La Figure 4.3-B montre que Le_{Chen} donne des résultats similaires à ceux des deux autres expressions dans les mélanges pauvres, mais atteint un maximum à $\varphi = 1,0$ puis diminue avec l'augmentation de la richesse même si Le devrait rejoindre son maximum dans les mélanges riches. Conséquemment, cette définition est rejetée pour l'extraction du Le des mélanges H₂-air. La Figure 4.3-B montre aussi Le_{Law} et Le_{BM} semble avoir atteint un plateau sous la limite riche à $\varphi = 1,4$, tandis que les résultats obtenus par Law et Sung (2000) et Sun et al. (1999a) rejoignent la limite riche quand $\varphi \geq 3,0$. Puisque Le_{BM} en combinaison avec l_{fG} donne les résultats les plus près de la limite riche, cette méthode est adoptée pour les mélanges H₂-air.

4.3.2 Mélanges CH₄-air

Les Le expérimentaux des mélanges CH₄-air sont présentés à la Figure 4.4 avec les limites pauvre et riche. Les limites pauvre et riche calculées ici sont similaires à celles rapportées par Hawkes et Chen (2004), mais la présente limite pauvre est légèrement supérieure à la valeur de 0,955 rapportée par Dinkelacker et al. (2011). Les limites pauvre et riche des mélanges CH₄-air montrent que le Le du CH₄ vaut près de 1 même s'il augmente légèrement avec un accroissement de φ .

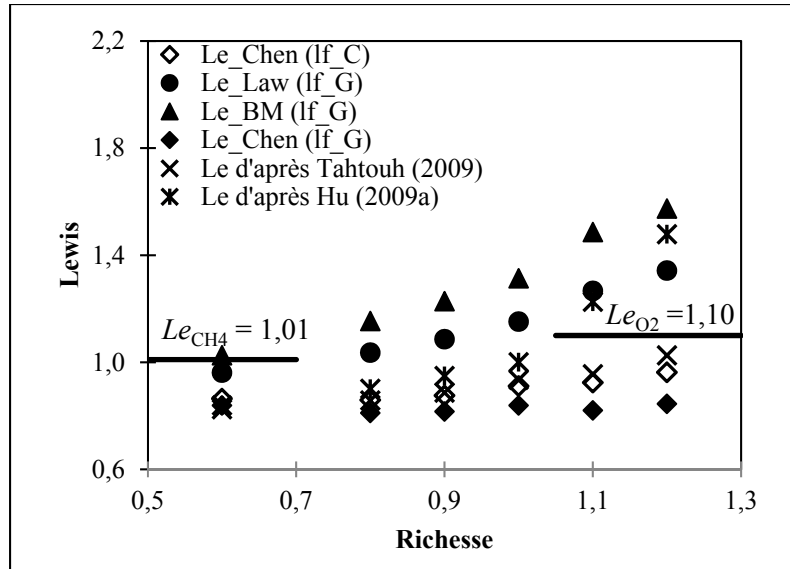


Figure 4.4 Le expérimental pour les mélanges CH_4 -air, avec les limites théoriques en mélanges pauvres et riches

La Figure 4.4 montre clairement que Le_{Law} et Le_{BM} (utilisés avec l_{fG}) produisent des Le nettement plus élevés que la limite riche, particulièrement dans les mélanges riches (les résultats de ces deux méthodes avec l_{fC} ne sont pas illustrés puisque, comme pour les mélanges H_2 -air, ils sont de beaucoup supérieurs à la limite riche). D'un autre côté, Le_{Chen} extrait avec l_{fG} (losanges pleins) demeure sous la limite pauvre en plus d'être insensible à ϕ . Au final, Le_{Chen} calculé avec l_{fC} (losanges vides) présente le meilleur accord avec les limites, autant dans la tendance que dans la valeur absolue. Comme pour la figure précédente, les L_b de Tahtouh et al. (2009) et Hu et al. (2009a) ont été utilisés pour illustrer l'étendue de la plage de Le . La méthode Le_{Chen} calculée avec l_{fC} est utilisée pour transformer leurs L_b en Le_{eff} . Les présents résultats sont similaires à ceux de Tahtouh et al. (2009) pour toute la plage de richesse et à ceux de Hu et al. (2009a) pour les mélanges pauvres.

4.3.3 Mélanges CO-air

Les limites des mélanges CO-air sont présentées à la Figure 4.5. La limite pauvre calculée ici est légèrement plus faible que la valeur de 1,09 rapportée par Hawkes et Chen (2004), tandis qu'aucune valeur comparative n'a pu être trouvée pour la limite riche. Les limites montrent que le Le du CO vaut près de 1 et qu'il est somme toute insensible à ϕ . Ce résultat n'est pas

surprenant puisque CO et O₂ ont des masses molaires semblables et des paramètres de Lennard-Jones (modèle permettant d'approximer l'interaction entre des atomes ou molécules neutres) similaires, ce qui résulte en des diffusivités massiques comparables. L'acétylène, dont la masse molaire est aussi semblable à celle du O₂, est connu pour avoir un Le près de 1 peu importe la richesse (Jomaas et al., 2007). Cette insensibilité du Le du CO par rapport à φ est bien reproduite par les trois méthodes d'extraction pour autant que l_{fG} est employée. La majorité des méthodes d'extraction donne des résultats se situant sous les limites. Le_{BM} présente le meilleur accord avec les limites, autant dans la tendance que dans l'absolue et est par conséquent la méthode employée et recommandée. La légère augmentation observée à $\varphi = 1,4$ et le Le légèrement plus faible à $\varphi = 0,6$, pourraient être associés à la présence de H₂ dans la flamme (2% à $\varphi = 1,4$ et 5% à $\varphi = 0,6$) puisque ces déviations correspondent à la sensibilité du H₂ envers φ . Il est d'ailleurs important de mentionner que tous les résultats CO-air présentés à la Figure 4.5 contiennent une faible fraction de H₂ (2% pour toutes les richesses sauf à $\varphi = 0,6$ où 5% H₂ ont été nécessaire) afin d'assurer l'inflammation et la combustion du carburant. Les calculs tiennent compte de la présence du H₂ dans le carburant.

Au final, les différences dans le comportement de la diffusion des combustibles, illustrées ci-dessus, signifient que l'extraction du Le depuis une flamme expérimentale ne peut pas se faire en suivant une méthode unique. Une méthode adaptée à chacun des combustibles doit être utilisée. Pour les combustibles employés ici, ces méthodes sont résumées au Tableau 4.2.

Tableau 4.2 Méthode d'extraction du Le à employer pour les combustibles à l'étude

Combustible	Méthode d'extraction
H ₂ ;CO	Le_{BM} combiné à l_{fG}
CH ₄	Le_{Chen} combiné à l_{fC}

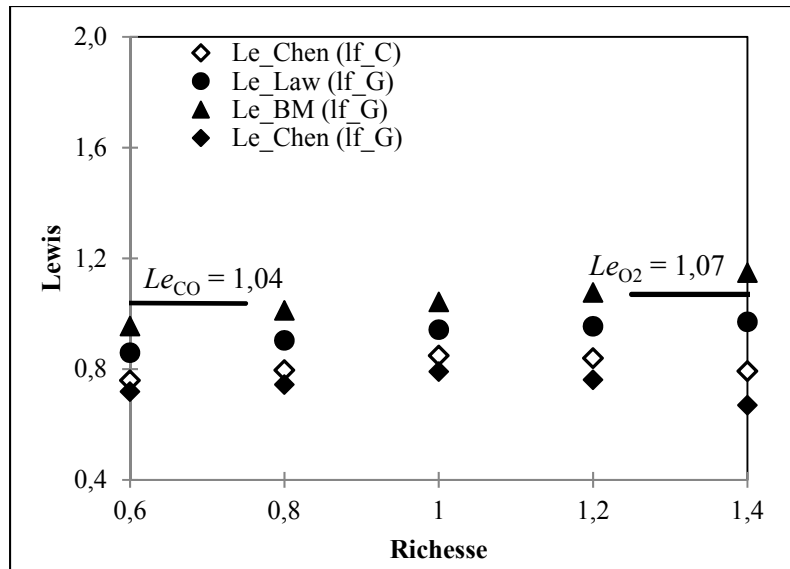


Figure 4.5 Le expérimental pour les mélanges CO-air, avec les limites théoriques en mélanges pauvres et riches

4.4 Résultats et discussion

La section précédente a permis d'identifier la méthode d'extraction à employer afin de déterminer expérimentalement Le . Dans la présente section, des carburants à deux et à trois combustibles sont utilisés pour comparer les résultats des diverses procédures de calcul empirique du Le_{eff} énumérées précédemment à la section 4.1. En comparant ces résultats aux nombres de Lewis expérimentaux, il sera possible d'identifier la procédure empirique qui estime adéquatement Le_{eff} .

4.4.1 Flammes H_2/CH_4

Le Tableau 4.2 indique que l'extraction expérimentale du Le du H_2 et du CH_4 est réalisée par deux méthodes distinctes. Conséquemment, il est nécessaire d'identifier, pour les carburants à plusieurs combustibles contenant du CH_4 , un point de transition délimitant les zones où chaque méthodologie est employée. Le L_b , nécessaire à l'extraction expérimentale de Le , fournit l'opportunité d'identifier ce point de transition. La Figure 4.6 présente les L_b de plusieurs carburants H_2/CH_4 à différentes richesses.

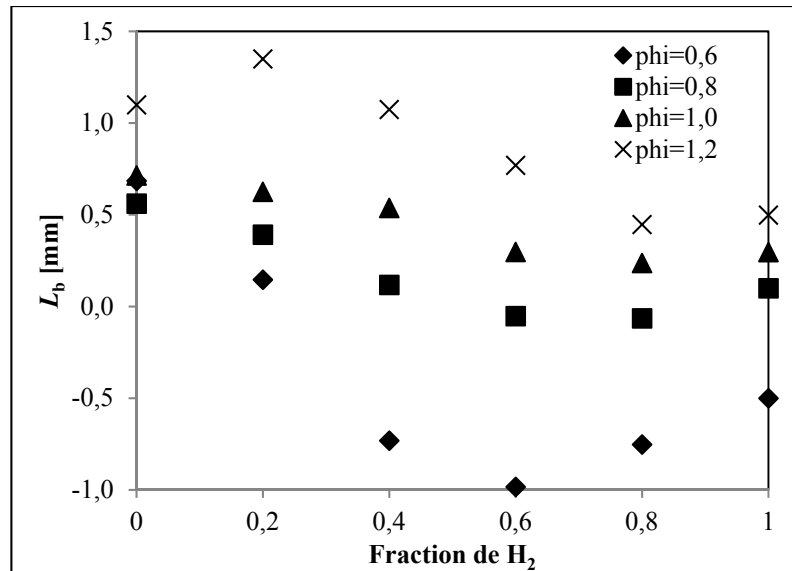


Figure 4.6 Longueurs de Markstein des carburants H₂/CH₄

À une richesse donnée, L_b subie une décroissance en partant du CH₄ pur (20% H₂ à $\phi = 1,2$) jusqu'à 80% H₂ (60% H₂ à $\phi = 0,6$) suivi d'une hausse vers le H₂ pur. Plusieurs auteurs (Bouvet et al., 2013; Huang et al., 2006; Okafor, Hayakawa, Nagano et Kitagawa, 2014) ont observé cette « restabilisation » où L_b dans du H₂ pur est plus élevé que dans un carburant ayant une faible concentration de CH₄. Selon Okafor et al. (2014), la « restabilisation » débute lorsque la concentration de H₂ dans le carburant H₂/CH₄ atteint 70%. C'est aussi à cette concentration de H₂ que la vitesse laminaire de flamme commence véritablement à répondre à l'ajout de H₂ dans du CH₄ (Sarli et Benedetto, 2007). Basé sur l'observation de cette « restabilisation » et sur le Tableau 4.2, la méthode Le_{Chen} associée à l_{fC} est employée pour les carburants H₂/CH₄ contenant $0 \leq H_2 \leq 70\%$ tandis que la méthode Le_{BM} associée à l_{fG} est préférée pour les carburants contenant $70 < H_2 \leq 100\%$.

Maintenant que la méthode d'extraction est bien identifiée, les Le expérimentaux sont comparés aux différents résultats obtenus avec les procédures empiriques de calcul décrites à la section 4.1. Cette comparaison est présentée à la Figure 4.7, dans laquelle ϕ augmente de 0,6 dans le graphique du haut à 1,2 dans le graphique du bas. La colonne de gauche de la figure permet d'évaluer les différentes définitions possibles pour Le_i (section 4.1.2) ainsi que les trois règles de mélanges présentées au Tableau 4.1. Tous les résultats de la colonne de

gauche sont calculés avec Le_{fO_2} (équation (4.8)), dans laquelle la définition $Le_{i,\alpha}$ est utilisée afin de déduire Le_{O_2} .

Les résultats pour les carburants H_2/CH_4 montrent que, pour une règle de mélange donnée, le choix du Le_i du carburant n'a pas d'influence significative. Toutefois, le choix de la règle de mélange est un facteur déterminant. La règle basée sur le volume (Le_V , équation ((4.5))), comme l'avait noté Bouvet et al. (2013), est la meilleure pour reproduire la tendance générale du Le expérimental. Cette règle restitue bien l'inflexion vers le haut observé quand le carburant atteint de fortes proportions de H_2 à $\varphi = 0,8$ et $1,0$, ainsi que la décroissance linéaire ($\varphi = 0,8$) et la stagnation ($\varphi = 1,0$) qui précèdent l'inflexion. Cette règle reproduit aussi qualitativement la décroissance linéaire continue observée expérimentalement à $\varphi = 0,6$ et l'augmentation non linéaire à $\varphi = 1,2$. La règle basée sur la chaleur (Le_H , équation ((4.6))) cause une augmentation de Le_{eff} dès que du H_2 est ajouté au CH_4 , ce qui est contraire à la tendance expérimentale pour les mélanges $\varphi \leq 1,0$. Le Le_{eff} obtenu avec la règle de diffusion (Le_D , équation ((4.7))) a pour sa part un aspect parabolique qui ne concorde pas avec la décroissance de $\varphi = 0,6$ et les inflexions nettes à $\varphi = 0,8$ et $\varphi = 1,0$.

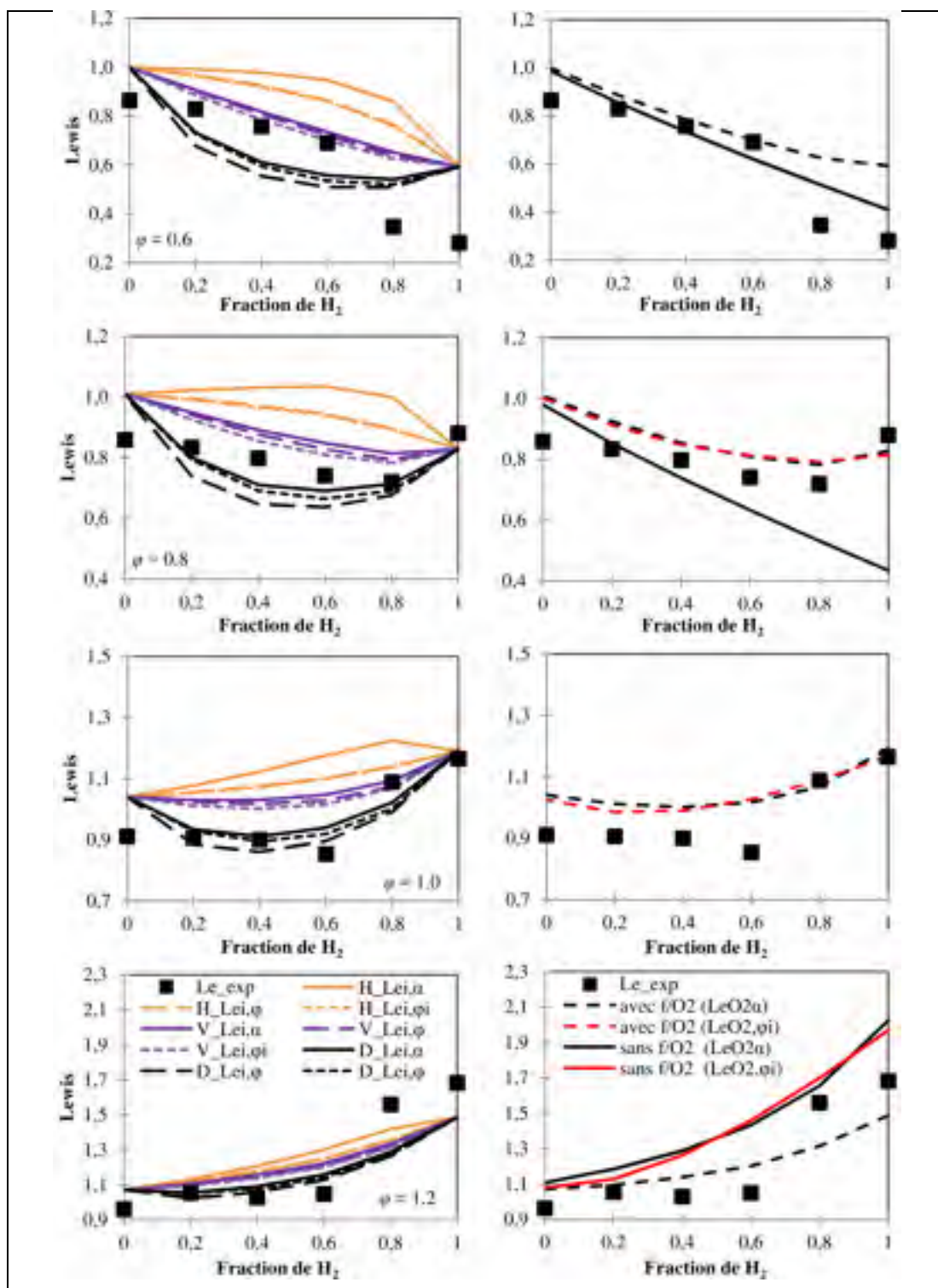


Figure 4.7 Comparaison des nombres de Lewis expérimentaux et empiriques des carburants H_2/CH_4 . ϕ augmente de haut en bas. La colonne de gauche permet de comparer les règles de mélange tandis que la colonne de droite permet d'évaluer si la combinaison f/O_2 est nécessaire

L'impact d'inclure ou d'exclure Le_{f/O_2} dans le calcul de Le_{eff} est illustré dans la colonne de droite de la Figure 4.7. Puisque les meilleurs résultats sont obtenus en utilisant Le_v , cette règle, combinée à Le_{i,ϕ_i} , est utilisée pour le calcul du Le de la partie carburant de l'équation Le_{f/O_2} . Puisque la définition $Le_{i,\phi}$ pour le calcul de Le_{O_2} n'améliorait pas les résultats, cette définition n'est pas incluse dans la figure afin d'en simplifier la lisibilité. Dans un premier temps, Le_{O_2} est calculé en considérant que le O_2 se diffuse vers la totalité du mélange (voir les courbes noires), c'est-à-dire selon la définition $Le_{i,a}$. Les résultats montrent deux comportements distincts:

1. À $\phi = 0,6$ et $1,2$, il y a un meilleur accord entre les résultats empiriques et expérimentaux lorsque la combinaison Le_{f/O_2} est ignorée (lignes continues). À $\phi = 0,6$, la décroissance expérimentale du Le vers de faibles valeurs est mieux reproduite sans cette combinaison. Il en est de même pour l'augmentation du Le observée à $\phi = 1,2$. Puisque Le_{f/O_2} a été conçue afin de combiner les réactifs excédent et déficient, il n'est pas particulièrement surprenant que Le_{f/O_2} fonctionne mieux, tel que démontré au prochain point, pour les mélanges qui sont près de la stœchiométrie. Hors de la stœchiométrie, Le_{f/O_2} doit toutefois être évité, comme le suggèrent Bouvet et al. (2013) pour leurs mélanges pauvres.
2. À $\phi = 0,8$ et $1,0$, une meilleure prédiction des Le expérimentaux est obtenue lorsque la combinaison Le_{f/O_2} est utilisée (lignes pointillées). À $\phi = 0,8$, la combinaison reproduit l'inflexion à la hausse du Le à $\chi_{H_2} = 80\%$; l'inflexion est manquée en l'absence de Le_{f/O_2} . Pendant ce temps, à $\phi = 1,0$, il est impossible de déterminer un réactif déficient. La combinaison Le_{f/O_2} , en définissant $A_I = 1$, permet de contourner ce problème. Les Le du carburant et de l'oxydant sont alors calculés chacun de leur côté indépendamment de qui est le réactif déficient avant d'être combinés. Il en résulte alors un Le_{eff} capable de varier en fonction de la concentration de H_2 dans le carburant. La figure montre que le calcul empirique parvient à bien reproduire le comportement expérimental. Les résultats présentés ici impliquent donc que Le_{f/O_2}

doit être utilisé sur la plage $0,8 \leq \varphi \leq 1,0$, où $\varphi = 0,8$ est le point de bascule, du côté pauvre, entre les zones proche et hors stœchiométrie.

Pour l'instant, seule la définition du Le_{O_2} pour laquelle O_2 se diffuse simultanément vers toutes les autres espèces du mélange ($Le_{O_2,\alpha}$) a été analysée. Puisque $Le_{i,\varphi i}$ s'est avéré être la meilleure définition du côté du carburant, elle est ici réutilisée pour l'oxydant, résultant en un $Le_{O_2,\varphi i}$ pour chaque combustible i . Et parce que Le_V s'est avérée être la meilleure règle de mélange pour les carburants, c'est elle qui est employée pour mélanger les $Le_{O_2,\varphi i}$. Cette méthode est identifiée par les courbes rouges dans la colonne de droite de la Figure 4.7. Restreindre l'utilisation de la règle Le_{f/O_2} à la plage $0,8 \leq \varphi \leq 1,0$ entraîne deux conséquences. D'une part, le Le_{eff} des mélanges où $\varphi < 0,8$ (comme à $\varphi = 0,6$ ici) ne dépend que de la diffusion des combustibles. Le calcul de Le_{O_2} n'est donc pas nécessaire. D'autre part, pour les mélanges riches comme à $\varphi = 1,2$ ici, Le_{eff} ne dépend que de la diffusion de O_2 et donc que de Le_{O_2} . Afin d'alléger la Figure 4.7, les Le_{eff} calculés avec $Le_{O_2,\varphi i}$ qui ne respectent pas les critères de l'utilisation de Le_{f/O_2} ne sont pas illustrés. La figure montre que pour tous les cas, $Le_{O_2,\varphi i}$ et $Le_{O_2,\alpha}$ donnent des Le_{eff} similaires. Conséquemment, une conclusion sur la méthodologie à utiliser pour le calcul de Le_{O_2} doit attendre l'analyse des résultats des carburants H_2/CO .

4.4.2 Flammes H_2/CO

Les Le_{eff} et les Le expérimentaux des carburants H_2/CO sont présentés à la Figure 4.8. Puisque les Le expérimentaux du H_2 et du CO sont tous deux extraits par la méthode Le_{BM} avec l_{FG} , c'est cette méthode qui est employée pour tous les carburants H_2/CO . La colonne de gauche de la Figure 4.8 compare les résultats obtenus avec les différentes définitions de Le_i ainsi que les règles de mélange. La combinaison Le_{f/O_2} , où Le_{O_2} est calculé selon la définition $Le_{i,\alpha}$, est utilisée dans tous les résultats de cette colonne.

Les deux graphiques du haut de la Figure 4.8 montrent qu'à $\varphi = 0,6$ et $0,8$, le Le expérimental décroît assez linéairement avec l'ajout de H_2 . Ce comportement n'est pas reproduit par Le_D quelle que soit la définition de Le_i employée. Pendant ce temps, à un même φ , Le_H et Le_V sont

notablement influencés par la définition utilisée pour calculer Le_i . Le comportement expérimental est bien reproduit à la fois par Le_H et Le_V lorsqu'associé à $Le_{i,\varphi i}$ et $Le_{i,\varphi}$, tandis que leur association avec $Le_{i,\alpha}$ ne permet pas de reproduire la tendance expérimentale. La similarité entre les prédictions de Le_H et Le_V dans les carburants H_2/CO avait été rapportée par Bouvet et al. (2013) pour les mélanges pauvres. Parmi les méthodes reproduisant bien les tendances et les absolues des valeurs expérimentales, l'utilisation de $Le_{i,\varphi i}$ mélangé avec Le_V est recommandé afin d'harmoniser la méthode de calcul avec celle des carburants H_2/CH_4 .

La colonne droite de la Figure 4.8 permet d'étudier comment la façon de calculer Le_{f/O_2} impacte les résultats. L'impact de la combinaison Le_{f/O_2} est d'abord évalué avec $Le_{O_2,\alpha}$. Tout comme pour les mélanges H_2/CH_4 , la figure montre que la combinaison Le_{f/O_2} (courbes en pointillé) n'est efficace que pour les mélanges proches de la stœchiométrie ($0,8 \leq \varphi \leq 1,0$). En effet, Le_{f/O_2} est moins précis dans sa prédiction de la décroissance de Le avec l'ajout de H_2 observée à $\varphi = 0,6$. En contrepartie dans les mélanges riches ($\varphi = 1,2$ et $1,4$ présentés dans les deux graphiques du bas de la figure - colonne de droite), le Le expérimental présente initialement une augmentation linéaire modérée quand du H_2 est ajouté au CO suivi d'une augmentation brusque quand le carburant tend vers le H_2 pur. Les deux courbes noires présentent plutôt une croissance linéaire de Le_{eff} . D'autres définitions de Le_{O_2} sont donc testées pour améliorer les résultats.

La section précédente n'avait pas permis d'identifier la définition de Le_{O_2} ($Le_{O_2,\alpha}$ ou $Le_{O_2,\varphi i}$ mélangé avec Le_V) à employer. Les deux graphiques du bas de la Figure 4.8 montrent que dans des carburants H_2/CO riches, $Le_{O_2,\alpha}$ n'est pas en mesure de reproduire le changement de tendance observé quand le carburant tend vers H_2 pur tandis que $Le_{O_2,\varphi i}$ présente une augmentation exponentielle qui prédit qualitativement bien les résultats expérimentaux. Néanmoins, il faut signaler les écarts pour le CO « pur » à $\varphi = 1,4$ (qui contient 2% de H_2 afin de permettre la combustion) et pour le carburant contenant 80% H_2 à $\varphi = 1,2$. Alors que peu d'écart est observé entre les deux définitions à $\varphi = 0,8$, le comportement non linéaire et l'inflexion vers le CO « pur » à $\varphi = 1,0$ est aussi mieux reproduit par $Le_{O_2,\varphi i}$. Conséquemment, $Le_{O_2,\varphi i}$ mélangé avec Le_V est la méthode recommandée pour le calcul du Le_{O_2} .

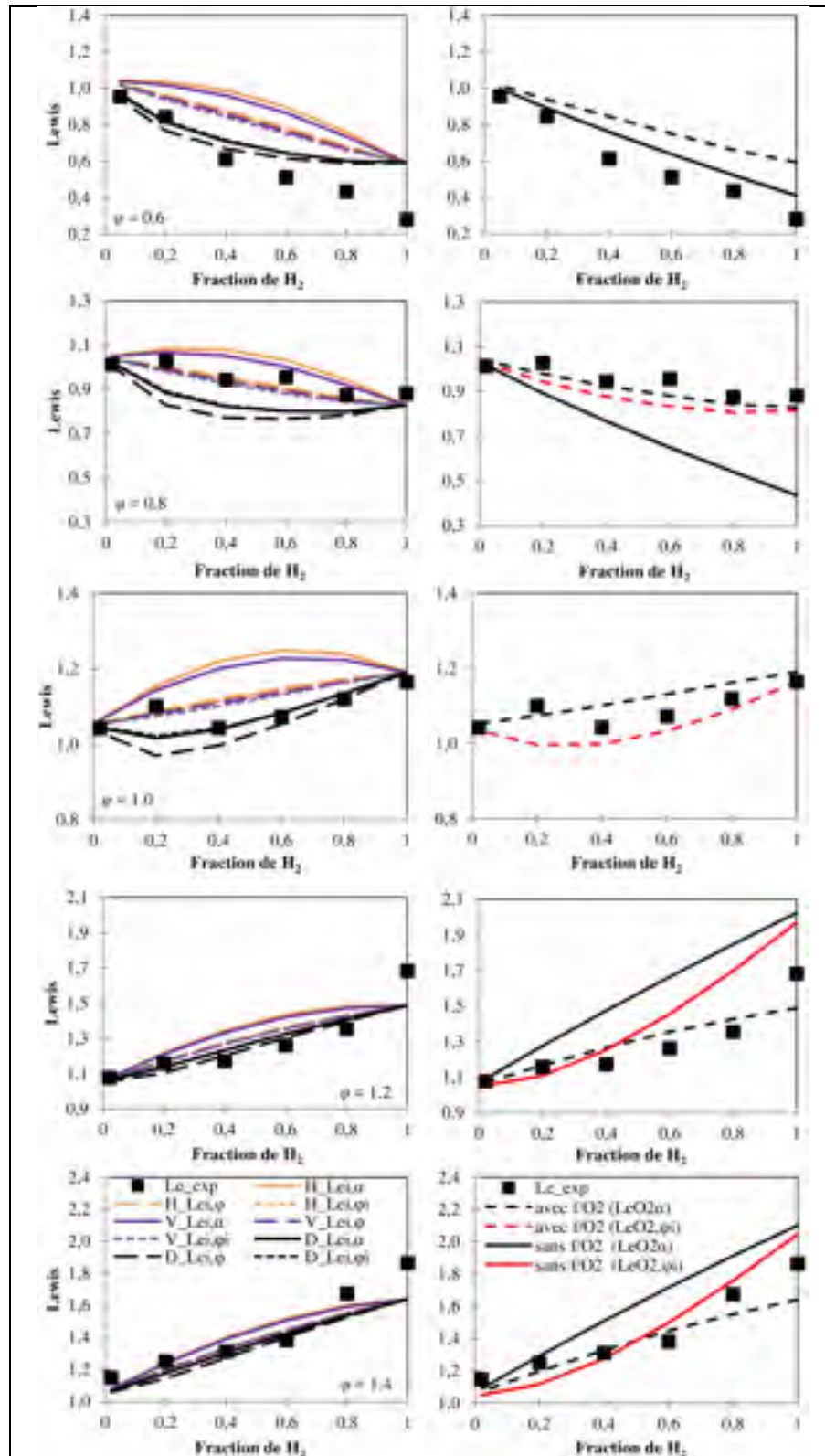


Figure 4.8 Comparaison des nombres de Lewis expérimentaux et empiriques des carburants H_2/CO

En résumé, les résultats montrent que le Le expérimental des carburants H_2/CO est prédit le plus correctement en mélangeant les $Le_{i,\varphi i}$ avec la règle Le_V . Dans les mélanges proches de la stœchiométrie ($0,8 \leq \varphi \leq 1,0$), Le_{f/O_2} est requis pour combiner les Le des réactifs déficient et excédent, qui sont calculés avec $Le_{i,\varphi i} + Le_V$ autant pour les combustibles que pour l'oxydant. Pour les mélanges plus pauvres et plus riches, il y a un réactif déficient clairement identifié et donc la combinaison Le_{f/O_2} n'est pas nécessaire. Dans les mélanges pauvres ($\varphi < 0,8$) où le carburant est déficient, seul le calcul des $Le_{i,\varphi i}$ des combustibles mélangés avec Le_V est nécessaire afin d'obtenir Le_{eff} . Dans les mélanges riches, Le_{eff} est obtenu en mélangeant par Le_V les $Le_{i,\varphi i}$ du O_2 se diffusant vers chacun des combustibles. La procédure de calcul à chaque richesse est résumée au Tableau 4.3.

Tableau 4.3 Méthodologie du calcul empirique du nombre de Lewis

	$\varphi < 0,8$	$0,8 \leq \varphi \leq 1,0$	$\varphi \geq 1,2$
Méthode de calcul du Le_i	$Le_{i,\varphi i}$	$Le_{i,\varphi i}$ et $Le_{O_2,\varphi i}$	$Le_{O_2,\varphi i}$
Méthode de calcul du Le_{eff}	Le_V	Le_V du carburant combiné à Le_V du O_2 via Le_{f/O_2}	Le_V

4.4.3 Flammes de $H_2/CO/CH_4$ et de $H_2/CO/CO_2$

Précédemment, des carburants à deux combustibles ont été étudiés afin de déterminer la méthodologie, résumée au Tableau 4.3, capable de calculer empiriquement Le_{eff} sur une grande plage de richesse. Afin de pleinement évaluer la méthodologie proposée, des tests supplémentaires ont été réalisés sur les carburants à trois combustibles présentés au Tableau 4.4.

Tableau 4.4 Composition des carburants à trois combustibles

Ratio H₂/CO	H₂	CO	CO₂	CH₄	Richesse
2/3	32	48	-	20	0,8
2/3	24	36	-	40	0,6
2/3	8	12	-	80	1
1.5	36	24	-	40	1,2
4	48	12	-	40	1
1.5	48	32	-	20	1
4	16	4	-	80	0,6
1.5	12	8	-	80	0,8
4	32	8	-	60	0,8
4	64	16	-	20	1,2
1/4	8	32	-	60	1,0
1/4	16	24	-	60	1,2
2/3	12	48	-	40	0,8
1/4	16	64	-	20	0,6
1/4	18	72	10	-	0,6
1.5	54	36	10	-	0,8
1.5	48	32	20	-	0,8
2/3	36	54	10	-	1
4	64	16	20	-	1
4	72	18	10	-	1,2
2/3	32	48	20	-	1,2
1/4	16	64	20	-	1,4

La Figure 4.9 compare le Le expérimental au Le_{eff} empirique de tous les carburants testés dans ce chapitre selon la méthodologie présentée au Tableau 4.3. Basé sur le Tableau 4.2, le Le expérimental a été extrait avec la méthode Le_{BM} combinée à l_{FG} , sauf pour les carburants

où $\chi_{CH_4} > 30\%$ pour lesquels la méthode Le_{Chen} avec l_{fc} a été employée. Globalement, Le_{eff} présente un très bon accord qualitatif avec la majorité des résultats expérimentaux. Les plus grands écarts ont été observés dans les mélanges riches de $H_2/CO/CH_4$. Finalement, les carburants H_2/CO_2 (dont les résultats sont présentés à l'ANNEXE VII pour ne pas alourdir le texte) ont aussi été étudiés en suivant ces méthodes d'extraction et de calcul, mais les Le_{eff} empiriques ne parviennent pas à prédire correctement les résultats expérimentaux. Des études supplémentaires sont donc nécessaires pour ce carburant et, de façon plus générale, pour les carburants comprenant un combustible et un diluant.

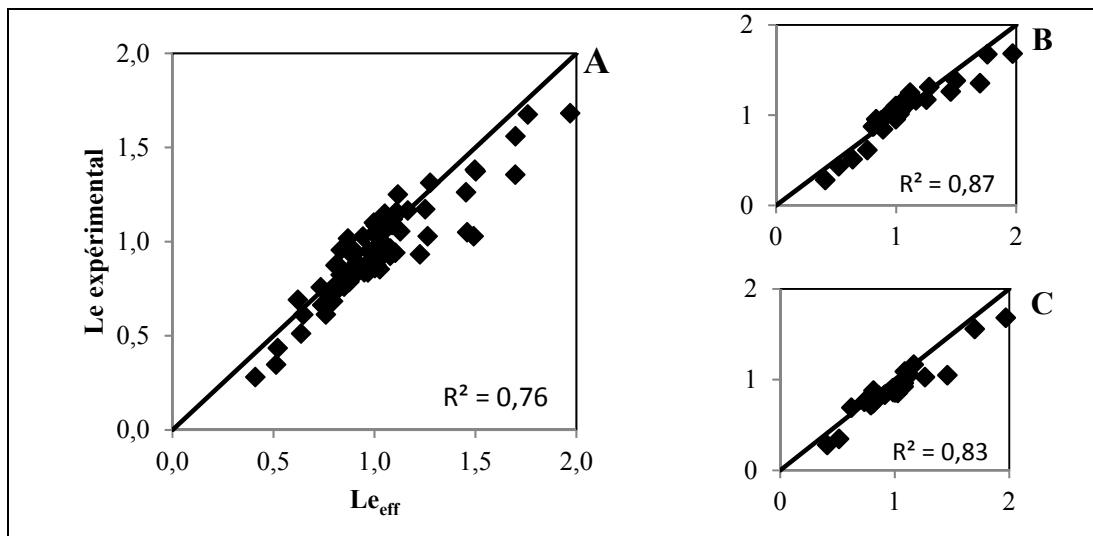


Figure 4.9 Comparaison entre les Le expérimentaux et les Le_{eff} calculés avec la méthode décrite au Tableau 4.3. A : tous les carburants testés, y compris ceux du Tableau 4.4, B : carburants H_2/CO seulement; C : carburants H_2/CH_4 seulement

4.5 Conclusion

Les méthodes empiriques du calcul du nombre de Lewis dans des carburants à plusieurs combustibles ont été analysées dans des mélanges pauvres et des mélanges riches afin d'identifier la méthode donnant les prédictions les plus précises. Cette identification se fait grâce à des comparaisons avec des Le expérimentaux. Conséquemment, il a aussi été nécessaire d'analyser les méthodologies d'extraction du Le depuis la longueur de Markstein d'une flamme en expansion sphérique proposées par Law et Sung (2000), Bechtold et

Matalon (2001) et Chen et al. (2009). Les conclusions à tirer concernant l'extraction expérimentale de Le sont les suivantes:

- La méthode d'extraction Le_{BM} (Bechtold et Matalon, 2001) donne les meilleurs résultats pour les flammes de H_2 , de CO ainsi que dans les carburants H_2/CO dilués ou non avec du CO_2 ;
- La méthode d'extraction Le_{Chen} (Chen et al., 2009) donne les meilleurs résultats dans les flammes de CH_4 ainsi que dans les carburants H_2/CH_4 tant que $H_2 < 70\%$. Pour des concentrations de H_2 plus élevée, la méthode Le_{BM} est recommandée.

Afin de déterminer le Le_{eff} d'un carburant à plusieurs combustibles, les trois étapes de calcul suivantes doivent être exécutées: 1) choisir une définition de Le_i afin de modéliser la diffusion de chaque combustible et de l'oxydant; 2) choisir une règle de mélange et 3) utiliser ou non la combinaison carburant-oxydant. Cette dernière étape dépend de la richesse du mélange. La méthodologie la plus précise a été identifiée sur des carburants H_2/CH_4 et H_2/CO avant d'être validée sur des carburants à trois combustibles représentatifs des syngas. Les principales conclusions sont:

- La règle de mélange basée sur le volume (Le_v) a été jugée la plus précise pour tous les carburants étudiés, y compris les carburants H_2/CO ;
- Le_i doit être calculé en ne considérant que le volume total d'air et le volume du combustible i , c'est-à-dire selon la définition $Le_{i,\phi i}$;
- Même si O_2 est le seul réactif déficient dans les mélanges riches, il faut calculer le Le_i de l'oxydant en considérant que le O_2 se diffuse intégralement mais indépendamment vers chaque combustible i , puis en mélangeant les $Le_{O_2,\phi i}$ ainsi obtenus par la règle Le_v ;

- La combinaison des Le du carburant et de l'oxydant (Le_{fO_2}) est nécessaire seulement dans les mélanges proches de la stœchiométrie ($0,8 \leq \varphi \leq 1,0$). Seul le Le du carburant est requis dans les mélanges plus pauvres, tandis que seul le Le de l'oxydant est requis quand $\varphi \geq 1,2$.

CHAPITRE 5

CELLULARITÉ

L'apparition de la cellularité est le début de la transition de la combustion laminaire vers un régime plus instable au cours duquel la vitesse augmente par un processus d'autoaccélération (Kwon et al., 2002; Law et Kwon, 2004; Okafor et al., 2016). Cette transformation, qui s'opère lorsque la flamme a atteint un certain rayon critique (R_{cr}), a des répercussions sur les propriétés et les performances de la combustion, et ultimement a une incidence sur la conception de la chambre à combustion. En effet, l'augmentation de la vitesse de flamme causée par l'apparition des cellules oblige à revoir la conception des injecteurs et les caractéristiques de l'écoulement dans la chambre à combustion afin par exemple d'éviter les retours de flamme. Cette apparition de cellules sur le front de flamme est le fait de deux mécanismes d'instabilités, qui sont détaillés à la section 1.3 et rappelés dans la première section de ce chapitre. L'interaction entre les deux mécanismes d'instabilité, particulièrement dans des carburants à plusieurs combustibles, est complexe et pas encore parfaitement comprise. Seul Jomaas et al. (2007) ont réussi à isoler l'effet des deux mécanismes d'instabilité, mais ils ne l'ont pas fait pour des carburants à plusieurs combustibles. Tous les articles publiés sur la cellularité analysent l'impact des deux propriétés les plus influentes sur la cellularité, à savoir le nombre de Lewis (Le) et l'épaisseur de flamme (l_f). Par contre, ils le font indirectement en faisant varier la composition du carburant. Cette façon de faire permet effectivement de qualifier l'effet de la variation de la composition, mais ne permet pas d'isoler l'effet des propriétés.

Ce travail vise donc à produire de nouvelles données servant à accroître la compréhension de l'interaction entre les mécanismes d'instabilité et le phénomène d'autoaccélération. Plus spécifiquement, ce chapitre cherche à 1) démontrer l'impact de la composition du carburant ainsi que l'impact de Le et l_f sur R_{cr} , 2) permettre de distinguer l'influence de chacun des mécanismes en se basant sur le phénomène d'autoaccélération et 3) établir une corrélation capable de prédire le moment de l'apparition de la cellularité à partir des propriétés du mélange air-carburant.

Suite à la présentation des mécanismes d'instabilité, ce chapitre consacre une section à chacun des trois thèmes présentés ci-dessus. Finalement, la conclusion résume les observations et les résultats.

5.1 Mécanismes causant les instabilités cellulaires

Les notions fondamentales expliquant l'apparition des instabilités cellulaires ont été présentées en détail à la section 1.3. Un bref rappel est présenté ici. Les instabilités thermodiffusives sont causées par l'écart entre les diffusions thermique et massique. Le ratio entre ces deux diffusivités est représenté par le nombre de Lewis. Lorsque Le est inférieur à la valeur critique $Le^* \sim 1,0$, c'est-à-dire lorsque la diffusion massique domine, la flamme est inconditionnellement instable. Au contraire, plus Le est grand par rapport à Le^* , plus la flamme est stable. Les instabilités hydrodynamiques sont pour leur part causées par l'important saut de masse volumique, représenté par le ratio d'expansion thermique ($\sigma = \rho_u / \rho_b$), que subissent les gaz en traversant la flamme. Ce saut étant inévitable, la flamme est intrinsèquement instable à cause de ce mécanisme. Ce mécanisme dépend aussi de l'épaisseur de flamme, puisqu'une flamme plus mince, en accroissant le gradient de masse volumique, rend le saut plus intense. L'instabilité hydrodynamique est donc proportionnelle à σ et inversement proportionnelle à l_f . Dans ce chapitre, la définition cinétique de l'épaisseur de flamme est adoptée (voir équation (4.9)).

La flamme réagit différemment face aux instabilités générées par ces deux mécanismes. Les instabilités thermodiffusives se manifestent dès le début de la flamme, sous la forme de larges fissures se ramifiant continuellement. Les instabilités hydrodynamiques entraînent plutôt une apparition soudaine sur toute la surface de la flamme de petites cellules de tailles et de formes régulières. Ces deux modes d'apparition de cellules se distinguent bien à la Figure 5.1, qui présente deux exemples de propagation d'une flamme sphérique de H_2/CO . La série de gauche a un ratio H_2/CO de 1,2, une richesse de 1,0 et contient 35% de CO_2 . La série de droite a un ratio H_2/CO de 6,33, une richesse de 0,93 et contient 35% de CH_4 .

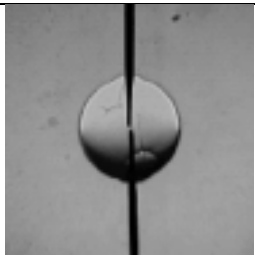
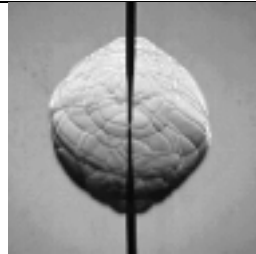
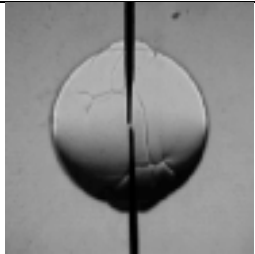
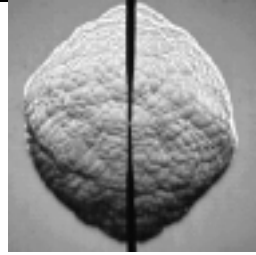
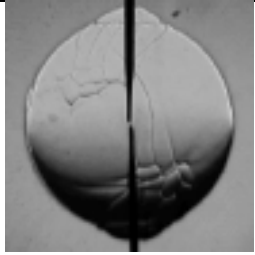
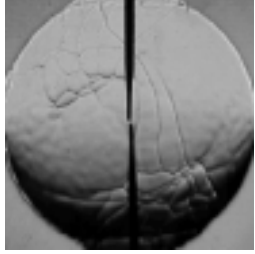
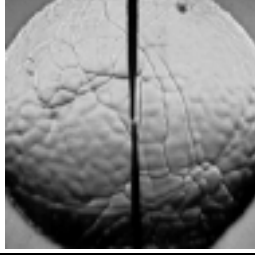
CO2.6		CH4.6	
$R=10\text{mm}$ $t=2,55\text{ms}$		$R=10\text{mm}$ $t=1,94\text{ms}$	
$R=15\text{mm}$ $t=3,98\text{ms}$		$R=15\text{mm}$ $t=3,47\text{ms}$	
$R=20\text{mm}$ $t=5,31\text{ms}$		$R=20\text{mm}$ $t=4,90\text{ms}$	
$R=25\text{mm}$ $t=6,43\text{ms}$		$R=25\text{mm}$ $t=6,22\text{ms}$	
$R=27,5\text{mm}$ $t=7,04\text{ms}$		$R=27,5\text{mm}$ $t=6,93\text{ms}$	
$Le_{eff} = 0,613$ $\sigma = 6,22$ $l_f(\text{mm}) = 0,0591$		$Le_{eff} = 0,919$ $\sigma = 7,22$ $l_f(\text{mm}) = 0,0500$	

Figure 5.1 Comparaison entre les impacts d'un ajout de CO₂ (gauche) et de CH₄ (droite) sur le comportement cellulaire d'une flamme H₂/CO

Dans le cas de la flamme de droite, le front de flamme est initialement plutôt lisse, avec seulement quelques fissures causées à l'allumage par l'étincelle. Ces fissures se propagent et se ramifient quelque peu, mais de larges portions du front de flamme demeurent lisses. Ce front de flamme est donc stable au regard du mécanisme thermodiffusif. À 25 mm toutefois, le front de flamme a perdu son aspect lisse au profit d'une texture ayant l'aspect d'une balle de golf. Cette perte abrupte de stabilité marque le début des instabilités hydrodynamiques. On remarque aussi que l'apparition des cellules hydrodynamiques ne dépend pas des plissements déjà présents sur le front de flamme à cause des instabilités thermodiffusives puisque les cellules hydrodynamiques apparaissent uniformément sur tout le front, même là où le front était parfaitement lisse. La série de gauche montre un comportement complètement différent. Des fissures sont aussi présentes dès le début, mais en plus grand nombre. De plus, ces fissures se propagent et se ramifient rapidement, au point d'occuper tout le front de flamme à $R = 15$ mm. La croissance des instabilités pour $R \leq 15$ mm est caractéristique du mécanisme thermodiffusif, puisque les cellules se développent avec des formes, des tailles et des distributions inégales. À $R = 20$ mm, le front de flamme est complètement marqué de petites cellules similaires, signifiant que le mécanisme hydrodynamique s'est déclenché.

5.2 Apparition de la cellularité

L'apparition de la cellularité est caractérisée par le rayon critique R_{cr} . Comme on l'a vu, il existe deux types de cellules différentes qui apparaissent à des moments différents. Les cellules de type thermodiffusive se forment lorsque les fissures initiées par l'allumage ou par les bosses sur l'électrode peuvent se ramifier et se rejoindre. Les cellules ainsi formées sont de tailles différentes et sont réparties non uniformément sur le front de flamme. Les cellules de type hydrodynamique ont une taille et une distribution uniforme et apparaissent brusquement sur le front de flamme. C'est l'apparition de ce type de cellules qui est choisi pour déterminer R_{cr} puisqu'il s'agit d'un événement soudain qui convient bien au concept de perte instantanée de stabilité (Kwon et al., 2002; Law et al., 2005). Expérimentalement, R_{cr} peut être déterminé soit par une analyse visuelle de la séquence d'image, ou soit en identifiant le moment où la variation régulière de S_b en fonction de κ s'arrête. Ces deux

façons de faire donnent des résultats similaires (Vu et al., 2011a). Dans cette étude, l'analyse visuelle de la séquence d'images est la méthode retenue pour déterminer R_{cr} . La première partie de cette section présente les incertitudes expérimentales associées à la détermination de R_{cr} . L'influence d'un ajout de CO_2 et de CH_4 sur le R_{cr} de syngas est ensuite évaluée. Finalement, le rôle des propriétés Le et l_f est investigué.

5.2.1 Incertitudes sur R_{cr}

L'incertitude sur R_{cr} a deux origines. La première est l'incertitude sur la valeur exacte du rayon due au grandissement et au choix du seuil. Cette incertitude a été présentée à la section 4.2.2. Toutefois, la seule valeur d'intérêt ici est la valeur de l'incertitude à $R = R_{cr}$.

La deuxième origine des incertitudes est liée au choix de l'image où apparaissent les premières cellules. L'incertitude sur le choix de l'image vient du fait que le rayon critique a été déterminé visuellement en regardant la séquence d'image. L'apparition des cellules est un événement soudain: alors qu'aucune cellule n'est visible à l'image $i-1$, elles commencent à apparaître à l'image i et sont pleinement formées à l'image $i+1$. Le rayon de l'image i est ainsi le rayon critique. Ceci donne tout de même une incertitude de ± 1 image, soit la durée de la transition entre l'absence totale de cellules à $i-1$ et les cellules pleinement formées à $i+1$. Cette incertitude correspond donc au déplacement moyen du front de flamme de $i-1$ à i et de i à $i+1$:

$$I_{dR} = \text{moyenne}((R_i - R_{i-1}); (R_{i+1} - R_i)) \quad (5.1)$$

Par exemple pour un front de flamme se déplaçant à une vitesse de 0,88 mm/image (carburant 54,5/45,5 H_2/CO avec richesse de 1,0), cela représente une incertitude de 5,9%. En ajoutant au moyen de l'équation (2.7) l'incertitude de 1,4% sur le rayon, on obtient une incertitude finale de 6,1% du R_{cr} de 14,86 mm. Les incertitudes de chacun des carburants testés dans ce chapitre sont présentées à l'ANNEXE VI.

5.2.2 Influence de l'ajout des additifs

La première partie de cette étude est dédiée à analyser l'impact d'un ajout de jusqu'à 35% de CH₄ ou de CO₂ sur le R_{cr} d'un carburant H₂/CO. Cette analyse est accomplie avec les carburants de la matrice de tests M1, présentée au Tableau 5.1. Le tableau présente aussi le R_{cr} observé ainsi que la nature des instabilités à R_{cr} : H si le front est seulement déstabilisé par le mécanisme hydrodynamique ou T si de grandes fissures thermodiffusives sont déjà présentes sur le front de flamme avant R_{cr} . Des carburants H₂/CO différents ont été choisis pour l'analyse des effets du CH₄ et du CO₂ afin d'avoir des points de départ différents. Un ratio H₂/CO de 1,2 est choisi pour l'étude de l'ajout de CO₂, tandis qu'un ratio H₂/CO de 6,33 est choisi pour l'étude de l'ajout de CH₄.

Tableau 5.1 Matrice de tests M1

Étiquette	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	ϕ	Le_{eff}	l_f	σ	R_{cr}	Nature
							(mm)		(mm)	
CO2.1	54,5	45,5	0	0	1	1,020	0,0318	7,050	14,86	T
CO2.2	51,8	43,2	5	0	1	0,964	0,0339	6,958	14,16	T
CO2.3	49,1	40,9	10	0	1	0,907	0,0365	6,859	14,35	T
CO2.4	43,6	36,4	20	0	1	0,790	0,0434	6,640	14,46	T
CO2.5	41	34	25	0	1	0,731	0,0479	6,515	14,66	T
CO2.6	35,5	29,5	35	0	1	0,613	0,0618	6,227	15,10	T
CH4.1	86,4	13,6	0	0	0,93	0,956	0,0268	6,894	11,78	T
CH4.2	82	13	0	5	0,93	0,950	0,0300	6,968	13,19	H
CH4.3	76	12	0	12	0,93	0,936	0,0348	7,052	14,72	H
CH4.4	69,1	10,9	0	20	0,93	0,927	0,0404	7,125	16,17	H
CH4.5	64,8	10,2	0	25	0,93	0,929	0,0438	7,162	18,54	H
CH4.6	56,1	8,9	0	35	0,93	0,919	0,0500	7,223	21,69	H

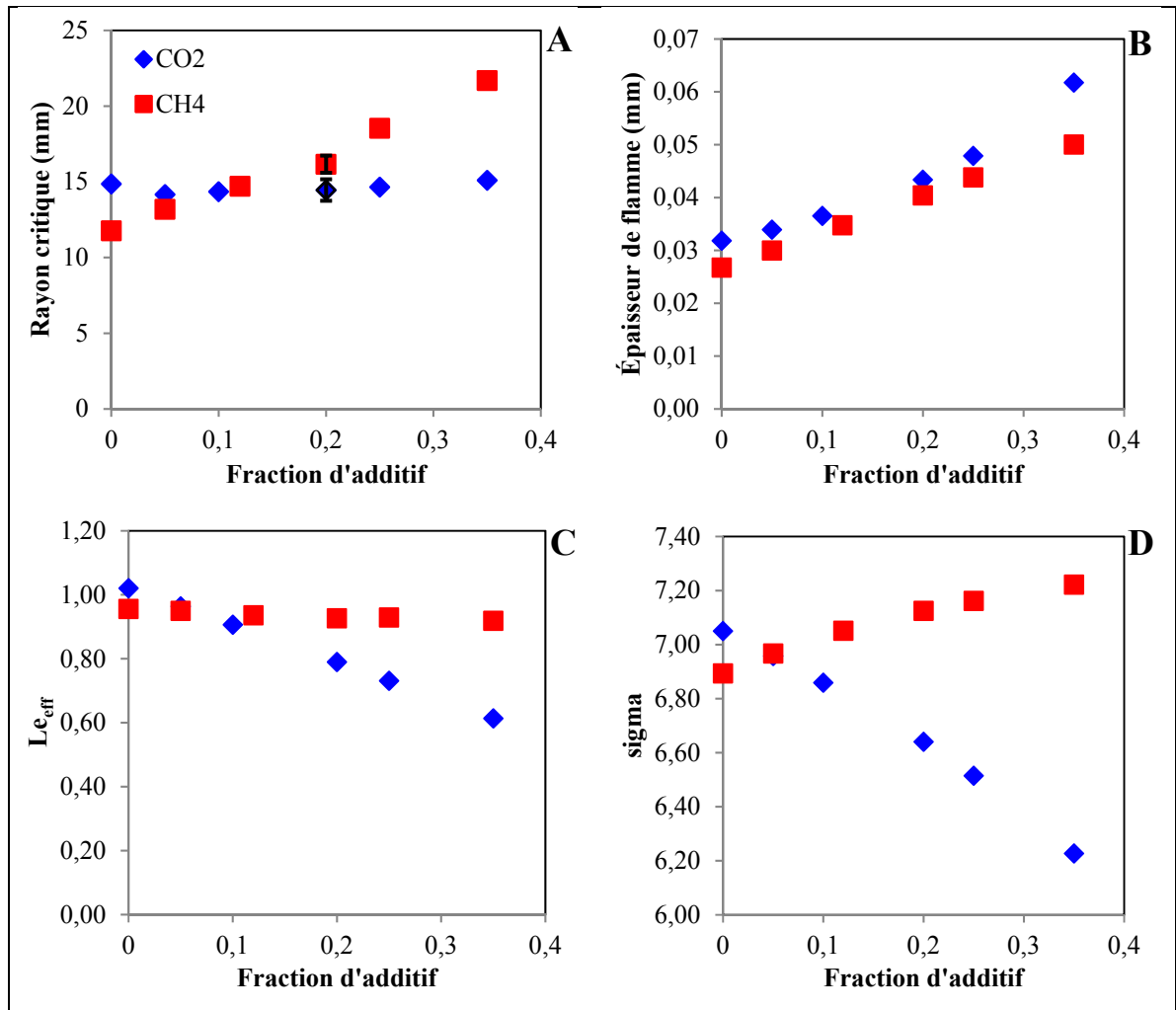


Figure 5.2 Impact d'un ajout de CO₂ et de CH₄ sur R_{cr} et sur les principales propriétés gouvernant les instabilités

L'évolution du R_{cr} en fonction de la concentration molaire de CO₂ et de CH₄ est présentée à la Figure 5.2A. La Figure 5.3 présente quant à elle les mêmes paramètres, mais normalisés par leurs valeurs respectives dans le syngas ne contenant pas de CO₂ ou de CH₄. L'ajout de CH₄ entraîne une augmentation de R_{cr} , ce qui se traduit par une augmentation de la stabilité. L'analyse des séquences d'images présentées à la Figure 5.4 brosse le même portrait. Sans CH₄, des petites cellules hydrodynamiques sont clairement visibles sur la flamme de rayon $R = 15$ mm, alors qu'à 12% CH₄, seules de larges fissures thermodiffusives sont visibles. De même, à $R = 25$ mm, des cellules hydrodynamiques parsèment le front de flamme à 0, 12 et 25% CH₄ tandis qu'elles commencent à peine à apparaître à 35% CH₄. Le même phénomène

a été observé par Vu et al. (2009). Toutefois, l'ajout de CO_2 n'a aucune conséquence sur R_{cr} . Les séquences d'images présentées à la Figure 5.5 montrent que l'aspect de la flamme est semblable pour toutes les concentrations de CO_2 . Conséquemment, l'ajout de CO_2 n'a pour ainsi dire aucun impact sur la stabilité du syngas. Au final, seul l'ajout de CH_4 entraîne un gain de stabilité. Ce gain survient malgré le fait que les flammes $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CH}_4$ ont un ratio H_2/CO plus élevé, et donc une concentration en H_2 beaucoup plus grande que dans les carburants $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2$. Afin de trouver des explications au comportement des flammes lors de l'ajout de CO_2 ou de CH_4 , les principaux facteurs associés aux instabilités, nommément l_f , Le_{eff} et σ , sont aussi présentés aux Figure 5.2 B, C et D respectivement.

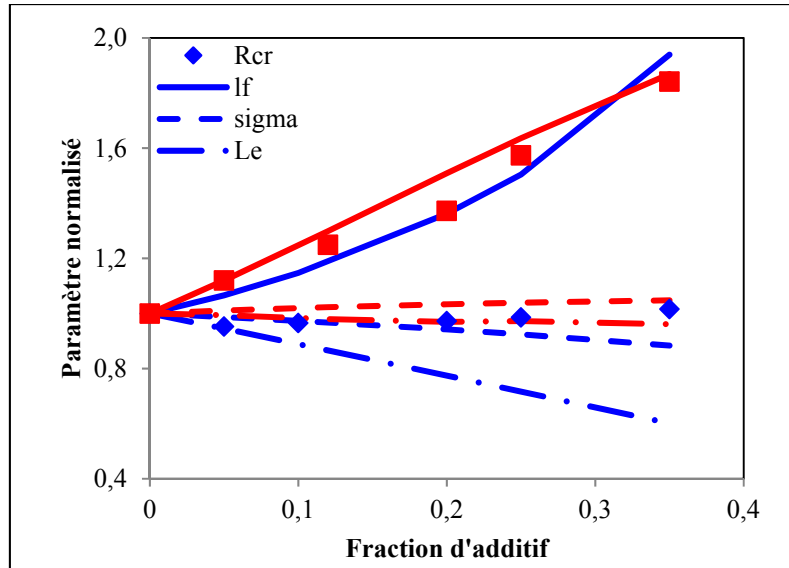


Figure 5.3 Variation adimensionnalisée de R_{cr} et des principales propriétés gouvernant les instabilités.
En bleu : ajout de CO_2 ; en rouge : ajout de CH_4

Le nombre de Lewis varie très peu avec l'ajout de CH_4 , ce qui indique que le syngas de base et le CH_4 ont des caractéristiques de diffusion similaires. Le Le_{eff} est légèrement inférieur à 1, ce qui permet de dire que le mécanisme thermodiffusif a un impact négligeable ou légèrement négatif sur la stabilité générale de la flamme. Conséquemment, le gain en stabilité causé par l'ajout de CH_4 doit être généré par le mécanisme hydrodynamique. Les instabilités hydrodynamiques sont effectivement réduites par la hausse significative de l_f , qui parvient à dominer la légère hausse de σ . La Figure 5.2 montre que R_{cr} augmente

linéairement avec l'ajout de CH₄. Une tendance similaire est notée pour l_f . Pendant ce temps, le taux de croissance de σ est réduit asymptotiquement avec l'ajout de CH₄. Par ailleurs, la Figure 5.3 montre que σ n'augmente que de $\sim 5\%$ sur la plage d'ajout de CH₄ étudié ici tandis que l_f et R_{cr} sont pratiquement doublés. La sensibilité du rayon critique envers σ semble donc faible, et la variation de R_{cr} est principalement contrôlée par l_f .

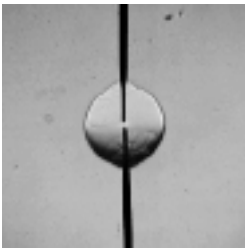
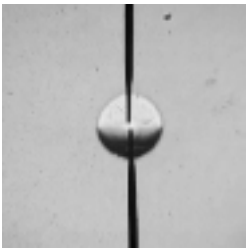
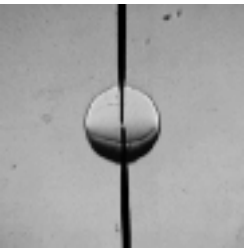
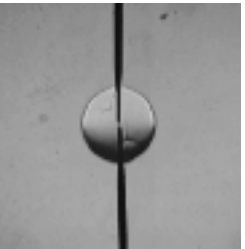
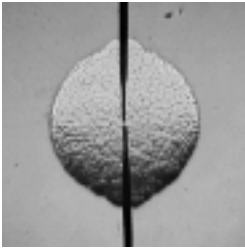
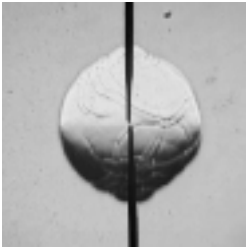
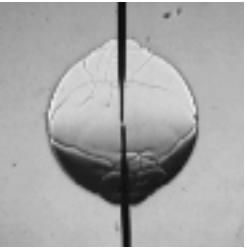
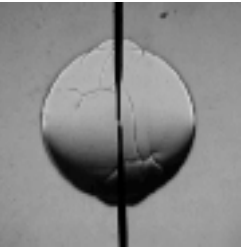
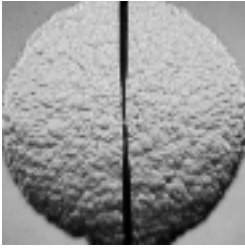
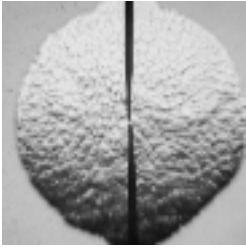
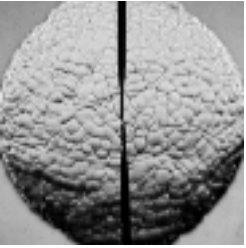
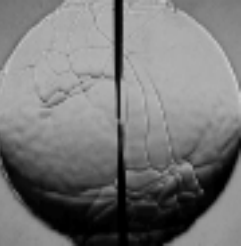
R (mm)	CH4.1 (0% CH ₄)	CH4.3 (12% CH ₄)	CH4.5 (25% CH ₄)	CH4.6 (35% CH ₄)
7,5				
15				
25				
	$Le = 0,956$ $\sigma = 6,89$ $l_f(\text{mm}) = 0,0268$	$Le = 0,936$ $\sigma = 7,052$ $l_f(\text{mm}) = 0,0348$	$Le = 0,929$ $\sigma = 7,162$ $l_f(\text{mm}) = 0,0438$	$Le = 0,919$ $\sigma = 7,223$ $l_f(\text{mm}) = 0,0500$

Figure 5.4 Évolution de l'apparence du front de flamme de syngas à diverses concentrations de CH₄

D'un autre côté, l'ajout de CO₂ n'affecte pas notablement R_{cr} (Figure 5.2A). Ce résultat contraste quelque peu avec celui de Vu et al. (2010), qui rapportent plutôt une légère augmentation de R_{cr} avec l'ajout de CO₂ dans un syngas. La Figure 5.2C montre pourtant que l'ajout de CO₂ a pour effet de favoriser le développement des instabilités thermodiffusives en entraînant une importante diminution de Le_{eff} . Cette diminution de Le_{eff}

est cependant accompagnée d'une légère diminution de σ ainsi que d'une croissance significative de l_f . Les variations subies par ces deux dernières propriétés ont pour effet de limiter la capacité du mécanisme hydrodynamique à déstabiliser la flamme et retardent donc le développement des cellules. La Figure 5.3 montre que l'augmentation de l_f causée par l'ajout de CO_2 (+ 94%) est similaire à celle causée par l'ajout de CH_4 (+ 87%). La promotion des instabilités par le mécanisme thermodiffusif est donc contrebalancée par l'affaiblissement du mécanisme hydrodynamique, ce qui a pour effet net de maintenir R_{cr} pratiquement constant dans le cas de l'ajout de CO_2 . Ces résultats sont un exemple de la complexité de la relation entre les paramètres gouvernant l'apparition des cellules. Une analyse plus fine du rôle de ces propriétés est commentée dans la partie qui suit.

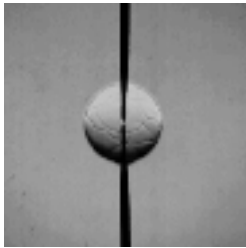
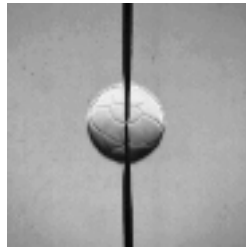
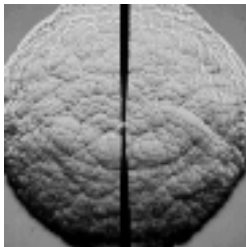
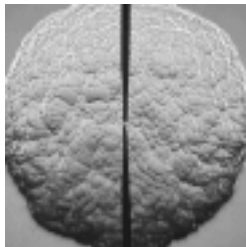
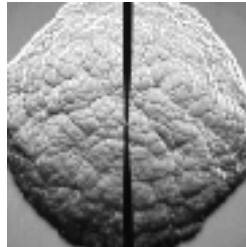
R (mm)	CO2.1 (0% CO_2)	CO2.3 (10% CO_2)	CO2.5 (25% CO_2)	CO2.6 (35% CO_2)
7,5				
15				
25				
	$Le = 1,020$ $\sigma = 7,050$ $l_f(\text{mm}) = 0,0318$	$Le = 0,907$ $\sigma = 6,958$ $l_f(\text{mm}) = 0,0339$	$Le = 0,731$ $\sigma = 6,515$ $l_f(\text{mm}) = 0,0479$	$Le = 0,613$ $\sigma = 6,227$ $l_f(\text{mm}) = 0,0618$

Figure 5.5 Évolution de l'apparence du front de flamme de syngas à diverses concentrations de CO_2

5.2.3 Influence des propriétés de la flamme

Une seconde matrice de tests (M2), présentée au Tableau 5.2, a été conçue afin de réaliser une étude paramétrique des effets de Le_{eff} et de l_f sur R_{cr} . La matrice est divisée en trois sections de six tests. Tous les carburants d'une même section ont la même épaisseur de flamme (soient 0,0350, 0,0475 ou 0,0600 mm, $\pm 0,0015$ mm), ce qui permet de mieux isoler l'effet de Le_{eff} . Pendant ce temps, plusieurs tests répartis entre les trois sections partagent le même Le_{eff} . Ceci permet de former les quatre groupes suivants : $Le_{eff} \sim 0,65$ (tests 2.8, 2.13, 2.14, 2.17), $Le_{eff} \sim 0,75$ (tests 2.2, 2.7, CO2.5, 2.15), $Le_{eff} \sim 0,95$ (tests CH4.3, 2.4, 2.9, 2.12) et $Le_{eff} \sim 1,10$ (tests 2.5, 2.11, 2.18).

Tableau 5.2 Matrice de tests M2

Étiquette	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	ϕ	Le_{eff}	l_f (mm)	σ	R_{cr} (mm)	Nature
2.1	77	23	0	0	0,83	0,820	0,0350	6,635	11,02	T
2.2	75	10	15	0	0,90	0,748	0,0350	6,501	11,65	T
CH4.3	76	12	0	12	0,93	0,936	0,0348	7,052	14,72	H
2.4	73	9	9	9	0,98	0,931	0,0344	6,983	15,83	T
2.5	82	0	0	18	1,00	1,094	0,0339	7,272	16,73	H
2.6	43,5	46,5	10	0	1,10	0,984	0,0340	6,903	15,29	T
2.7	55	35	10	0	0,82	0,739	0,0465	6,471	13,01	T
2.8	59	12	24	5	0,92	0,669	0,0464	6,479	14,77	T
2.9	32	45	0	23	0,92	0,937	0,0478	7,176	24,03	H
CO2.5	41	34	25	0	1,00	0,731	0,0479	6,515	14,66	T
2.11	30	30	10	30	1,20	1,076	0,0482	7,193	Stable	-
2.12	60	0	20	20	1,10	0,953	0,0480	6,964	Stable	-
2.13	44	38,5	17,5	0	0,80	0,677	0,0579	6,283	13,65	T
2.14	52,5	10	27,5	10	0,91	0,617	0,0573	6,491	17,04	T
2.15	27	30	20	23	0,95	0,743	0,0610	7,000	Stable	-
2.16	20	30	20	30	1,10	0,810	0,0593	7,186	Stable	-
2.17	31	31	38	0	1,10	0,625	0,0618	6,062	16,35	T
2.18	50	0	20	30	1,20	1,151	0,0599	6,938	Stable	-

L'impact de Le_{eff} et de σ sur R_{cr} de flammes partageant la même épaisseur de flamme est illustré aux Figure 5.6A et Figure 5.6B respectivement. La Figure 5.6A montre qu'accroître Le_{eff} cause une augmentation de R_{cr} et favorise donc la stabilité de la flamme. La tendance contraire semble exister pour les trois cas à $l_f = 0,0600$ mm, mais il n'y a pas assez de points pour tirer une conclusion. Cette figure indique aussi qu'à un Le_{eff} donné, le carburant possédant la flamme la plus épaisse sera le plus stable. Dans la présente étude, des cellules sont apparues sur toutes les flammes ayant la plus faible l_f , incluant la flamme du cas 2.5 (voir Tableau 5.2) pour lequel Le_{eff} est pourtant > 1 . En augmentant l_f , certaines flammes réussissent à se propager sans développer de cellules hydrodynamiques. Il est intéressant de noter qu'avec l'augmentation de l_f , le Le_{eff} minimal nécessaire pour prévenir la formation de cellules (au moins à l'intérieur des 30 mm de rayon possibles avec le montage actuel) devient de plus en plus petit. À $l_f = 0,0350$ mm, des cellules parviennent de se développer même sur une flamme ayant $Le_{eff} = 1,09$. Toutefois, à $l_f = 0,0475$ et $0,0600$ mm, le nombre de Lewis critique (Le_{cr}) diminue à $Le_{eff} \sim 0,95$ et $Le_{eff} \sim 0,70$ respectivement.

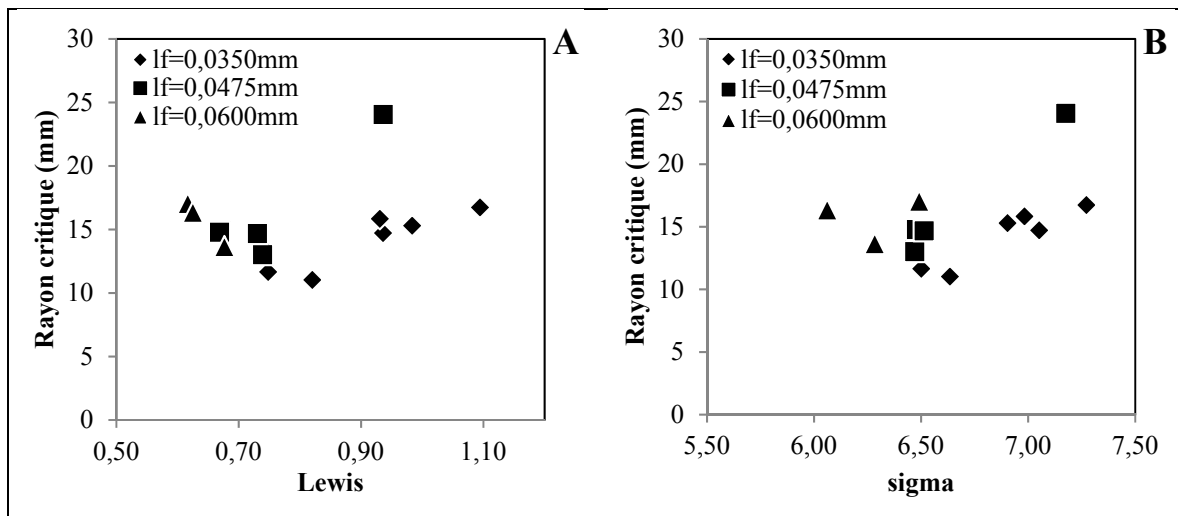


Figure 5.6 Influence du Le (gauche) et de σ (droite) sur le R_{cr} de flammes de syngas à diverses épaisseurs de flamme

5.3 Autoaccélération

Une des conséquences de l'apparition des cellules est la croissance de perturbations locales qui forcent le plissement de la flamme. Ce plissement cause une augmentation de l'aire de la

flamme et donc une augmentation de la vitesse de flamme (Ashurst, 1997). Puisque la vitesse augmente par des mécanismes intrinsèques à la flamme et en l'absence de changement à l'écoulement, les flammes cellulaires sont dites « autoaccéléranes ». On peut raisonnablement s'attendre à ce que les perturbations croissent aussi longtemps que la flamme se propage, causant une augmentation continue de la vitesse de flamme. Cette autoaccélération est caractérisée par le coefficient β dans l'équation (5.2) qui décrit le changement de rayon de la flamme sphérique (R) en fonction du temps (Kwon et al., 2002; Okafor et al., 2016).

$$R(t) = R_0 + Ct^\beta \quad (5.2)$$

La méthode de régression non linéaire de Marquardt du logiciel Statgraphics (StatPoint Technologies Inc., 2010) est utilisée pour déterminer la valeur des paramètres R_0 , C et β . Ce modèle épouse très bien les données expérimentales puisque le coefficient de détermination a été supérieur à 0,9975 pour toutes les flammes. Le paramètre R_0 est une origine virtuelle et représente la période initiale durant laquelle la propagation de la flamme est stable. Le paramètre C dépend de la vitesse laminaire de flamme et des propriétés de diffusion de la flamme. En absence d'autoaccélération, $\beta = 1$ et le rayon croît linéairement avec le temps. La flamme est autoaccéléranne lorsque $\beta > 1$. De plus, un $\beta > 1$ adoptant une valeur constante tout au long de la propagation de la flamme indique que la propagation et la morphologie de la flamme ont un caractère fractal, ce qui peut suggérer que la flamme plissée est autoturbulente (Kwon et al., 2002). Le coefficient d'autoaccélération est lié à l'excès fractal d par la relation $\beta = 1/(1 - d)$ (Kwon et al., 2002). Il a été démontré théoriquement que la dimension fractale ($D = 2 + d$) d'une flamme turbulente a une valeur $D = 7/3$ (Inage, Kobayashi et Kobayashi, 1999), ce qui correspond à $\beta = 1,5$ (Gostintsev, Istratov et Shulenin, 1988).

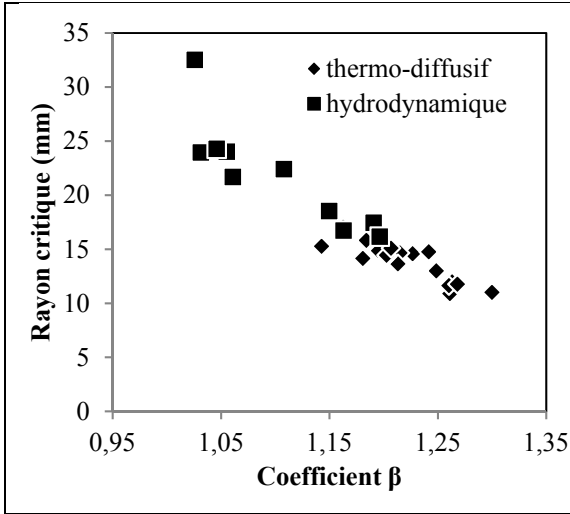
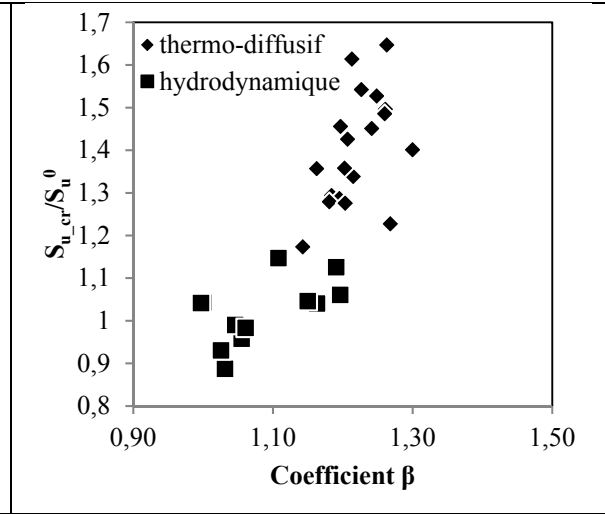
Tableau 5.3 Matrice de test M3

Étiquette	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	φ	Le_{eff}	l_f	σ	R_{cr}	Nature
							(mm)		(mm)	
3.1	75	25	0	0	0,82	0,811	0,0363	6,61	10,90	T
3.2	65	20	0	15	1,00	1,043	0,0350	7,26	17,46	H
3.3	44	38,5	17,5	0	0,80	0,676	0,0579	6,28	14,59	T
3.4	30	20	24	26	1,10	0,786	0,0608	7,05	Stable	-
3.5	32,5	31	36,5	0	0,97	0,571	0,0682	6,16	16,42	T
3.6	66	23	11	0	0,80	0,690	0,0449	6,34	11,98	T
3.7	30	30	0	40	1,20	1,179	0,0462	7,40	Stable	-
3.8	32	68	0	0	0,90	0,930	0,0446	6,93	17,43	T
3.9	37,5	37,5	0	25	1,1	1,063	0,0395	7,43	23,95	H
3.10	15	45	17,5	22,5	0,973	0,796	0,0584	7,11	32,53	H
3.11	20	20	20	40	0,833	0,717	0,0845	6,69	Stable	-
3.12	32,5	32,5	15	20	0,704	0,641	0,0901	6,10	22,42	H
3.13	32,5	32,5	15	20	0,953	0,796	0,0538	7,04	24,30	H

Afin d'accroître la variété dans les résultats déjà obtenus à partir des matrices M1 et M2, des carburants supplémentaires, présentés au Tableau 5.3, ont été testés. Les cinq derniers carburants de la table ont notamment été conçus afin d'avoir des flammes ayant des R_{cr} élevés. Ainsi les données des matrices M1, M2 et M3 ont été analysées et le résultat est présenté à la Figure 5.7, qui montre qu'il existe une forte corrélation ($R^2 = 0,85$) entre R_{cr} et β . Comme prévu, les flammes les plus stables ont un coefficient d'accélération $\beta = 1$. Cela illustre que les flammes ne subissent pas d'autoaccélération quand le front de flamme demeure laminaire. Quand β augmente, R_{cr} diminue, ce qui indique bien qu'une flamme se déstabilisant plus rapidement subit une forte autoaccélération. La valeur maximale atteinte par le coefficient d'autoaccélération est de $\beta = 1,30$. Cette valeur maximale est similaire au $\beta = 1,33 \pm 0,03$ obtenue par Jomaas (2008, p. 153) avec des carburants spécialement choisis pour devenir instables pratiquement immédiatement après l'allumage.

En plus de confirmer ces résultats, la présente expérience indique qu'il est possible d'identifier la nature des instabilités subies par la flamme à partir du coefficient d'autoaccélération. La Figure 5.7 montre que lorsque l'autoaccélération est faible ($\beta < 1,15$), la flamme n'est sujette qu'aux instabilités hydrodynamiques. Une forte autoaccélération ($\beta > 1,20$) cause cependant l'apparition des instabilités thermodiffusives. Il existe finalement une zone de transition où il est impossible de déterminer la nature exacte des instabilités.

Le caractère fractal des instabilités du front de flamme est associé au coefficient d'autoaccélération par la dimension fractale. Cette dimension fractale est en quelque sorte le ratio entre l'aire et le rayon. L'aire de surface d'une sphère est normalement liée au carré du rayon. La dimension fractale est cependant supérieure à 2, illustrant bien l'accroissement de l'aire due à l'apparition des cellules. La Figure 5.7 montre que l'autoaccélération est plus faible dans les flammes déstabilisées uniquement par le mécanisme hydrodynamique. Il en résulte un plus faible taux d'accroissement de l'aire du front de flamme. Ceci implique que les flammes uniquement déstabilisées par le mécanisme hydrodynamique résistent mieux à la division subséquente des cellules initiales. Au contraire, dans les flammes qui sont déjà instables à cause du mécanisme thermodiffusif au moment de l'apparition des cellules hydrodynamiques (rappelons que c'est à l'apparition de ces dernières que R_{cr} est défini), les deux mécanismes se combinent pour diviser rapidement les cellules déjà existantes, augmentant le taux d'accroissement de l'aire en fonction du rayon. Il en résulte une plus forte autoaccélération de la flamme. Selon ces résultats, les flammes présentant uniquement des cellules hydrodynamiques possèdent une dimension fractale ne dépassant pas 2,13, tandis que les flammes combinant les instabilités hydrodynamique et thermodiffusive ont une dimension fractale supérieure à 2,17. Toutefois, bien que la dimension fractale des flammes les plus instables tende vers $7/3$, cette valeur n'est atteinte par aucune flamme. Cette observation implique qu'aucune flamme n'est autoturbulente.

Figure 5.7 Relation entre R_{cr} et β Figure 5.8 Vitesse à R_{cr} en fonction de β

Même si β permet d'identifier la nature de l'instabilité, il ne montre aucune corrélation particulière avec les paramètres Le_{eff} , l_f et σ gouvernant les instabilités. Toutefois, en raison de la forte dépendance entre le rayon R_{cr} et le coefficient d'accélération β , il est raisonnable de penser qu'il puisse y avoir un lien entre cette l'accélération et la vitesse de la flamme au rayon critique (S_{u_cr}). Suivant le concept appliqué aux flammes turbulentes, le ratio S_{u_cr}/S_u^0 est calculé afin de voir si un critère simple peut aider à prédire la nature des instabilités. L'idée étudiée ici est qu'il est possible qu'il existe une proportionnalité entre S_u^0 , qui est une propriété intrinsèque de la flamme, et la vitesse de la flamme au moment où le front ne peut plus résister aux instabilités. La Figure 5.8 présente ce ratio S_{u_cr}/S_u^0 pour les carburants des matrices M1, M2 et M3 en fonction de β et montre que ce ratio peut être utilisé pour identifier la nature des instabilités. Pour les carburants étudiés dans ce chapitre, un ratio S_{u_cr}/S_u^0 inférieur à 1,15 est relié au développement d'instabilités exclusivement hydrodynamiques, tandis qu'un ratio supérieur ou égal à 1,15 est lié au développement d'instabilités thermodiffusives précédant les instabilités hydrodynamiques. Les instabilités thermodiffusives causent fort probablement un début d'accélération avant R_{cr} , ce qui se traduit par un ratio S_{u_cr}/S_u^0 plus élevé.

5.4 Nombre de Peclet et prédiction de l'apparition des cellules

Grâce aux critères établis aux sections précédentes, il est maintenant possible d'identifier pour chaque flamme le mécanisme qui cause l'apparition des cellules. Ces critères ne permettent toutefois pas prédire à quel moment les cellules apparaîtront. L'analyse linéaire de la stabilité effectuée par Bechtold et Matalon (1987) offre un modèle théorique permettant de prédire le comportement de la flamme sous l'action combinée des mécanismes hydrodynamique et thermodiffusif. Cette analyse, qui a par la suite été corrigée et raffinée (Addabbo et al., 2002; Bradley et Harper, 1994; Bradley, 1999), donne le taux de croissance Σ d'une perturbation de nombre d'onde n

$$\Sigma = \frac{1}{R} \frac{dR}{dt} \left(\omega - \frac{\Omega}{Pe} \right) \quad (5.3)$$

$$\Omega = Q_1 + \frac{Ze(Le_{eff} - 1)}{(\sigma - 1)} Q_2 + Pr Q_3 \quad (5.4)$$

Dans l'équation (5.4), les coefficients ω , Q_1 , Q_2 et Q_3 dépendent seulement du nombre d'onde n et du ratio d'expansion thermique σ , et Pr est le nombre de Prandtl. Les équations nécessaires pour calculer ces coefficients, qui proviennent de Addabbo et al. (2002), ne sont présentées qu'à l'ANNEXE VIII afin d'alléger le texte. Le nombre de Peclet (Pe) est le ratio entre le rayon et l'épaisseur de flamme et permet d'exprimer le rayon de façon non-dimensionnelle. Les effets hydrodynamiques et les effets de transport (conduction thermique, diffusion de la masse et viscosité) sont modélisés par les coefficients ω et Ω respectivement (Okafor et al., 2016). L'idée derrière cette théorie est que le front de flamme est stable à tous instants t si le taux de croissance Σ d'une perturbation est négatif pour tous les nombres d'onde. La flamme est toutefois instable si Σ est positif à au moins un n . Selon l'équation (5.3), le signe de Σ dépend de Ω , et donc des propriétés de transport de la flamme. Lorsque $\Omega < 0$, le terme entre les parenthèses est positif et l'amplitude des perturbations croît dès la naissance de la flamme. Puisque rien ne retient cette croissance, une telle flamme est intrinsèquement instable. Toutefois, lorsque $\Omega > 0$, le terme entre parenthèses est négatif jusqu'à ce que Pe (qui est initialement petit) atteigne une valeur critique Pe_{cr} . À cet instant,

le ratio Ω/Pe devient inférieur à ω et le taux de croissance des perturbations devient positif. La valeur critique Pe_{cr} marque donc le moment où les cellules apparaissent. La flamme peut être instable à plusieurs nombres d'onde. Pe_{cr} correspond au nombre d'onde minimisant le ratio entre les effets de transport et les effets hydrodynamiques.

$$Pe_{cr} = \frac{R_{cr}}{l_f} = \min\left(\frac{\Omega}{\omega}\right) \quad (5.5)$$

Jomaas et al. (2007) ont réinterprété l'équation (5.4) afin que Pe_{cr} exprime distinctement le rôle des mécanismes hydrodynamique et thermodiffusif tel que présenté par l'équation (5.6):

$$Pe_{cr} = Pe_1(\sigma) + Ze(Le - 1)Pe_2(\sigma) \quad (5.6)$$

Dans l'équation (5.6), $Pe_1(\sigma)$ représente l'instabilité hydrodynamique, c'est-à-dire l'instabilité inhérente à la flamme causée par σ . Le deuxième terme représente l'influence additionnelle occasionnée par le mécanisme thermodiffusif. Jomaas et al. (2007) ont observé que le Pe_{cr} d'une flamme d'acétylène a une valeur constante d'environ 350-375 qui est indépendante de φ ou de la pression initiale. Puisque l'acétylène est virtuellement équidiffusif ($Le \sim 1$), ils ont conclu que Pe_1 est une constante.

Les Pe_{cr} des flammes de la matrice M1 sont présentés à la Figure 5.9. Comme le montre la figure, les Pe_{cr} des carburants $H_2/CO/CH_4$ sont compris dans une étroite plage variant entre 400 et 440. La concentration en CH_4 n'a donc pas d'impact sur le Pe_{cr} . La même tendance a été notée par Vu et al. (2009) sur des carburants $H_2/CO/CH_4$ à d'autres richesses. La Figure 5.3 rapporte que l'ajout de CH_4 dans ce carburant H_2/CO à cette richesse n'a pas d'incidence notable sur le Le_{eff} , qui affiche une réduction maximale de 4 % quand le carburant passe de 0 à 35% de CH_4 . Le caractère quasi équidiffusif de ce carburant H_2/CO n'est pas modifié par l'ajout de CH_4 . Ces résultats indiquent que le caractère constant du Pe_{cr} d'un carburant équidiffusif, initialement observé sur un carburant pur, peut être généralisé aux carburants comprenant plusieurs combustibles.

À l’opposé, la Figure 5.9 montre que l’ajout de CO_2 à une flamme de H_2/CO entraîne une décroissance constante du Pe_{cr} , une tendance aussi observée par Vu et al. (2010). La Figure 5.3 rapporte que l’ajout de CO_2 cause une diminution du Le_{eff} , mais aussi une augmentation de l_f . Toutefois, l’augmentation de l’épaisseur de flamme ne parvient pas à compenser l’augmentation des instabilités thermodiffusives représentée par la diminution de Le_{eff} . Cette observation tend à confirmer la prédominance du mécanisme thermodiffusif sur l’apparition des cellules (Sun et al., 2012). Les lignes de la Figure 5.9 présentent les valeurs théoriques de Pe_{cr} calculées à l’aide de l’équation (5.5) et montrent que la théorie permet de reproduire les tendances observées expérimentalement. En effet, le comportement équidiffusif des carburants $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CH}_4$ est correctement prédit, limitant Pe_{cr} à l’étroite plage 205-215. L’ajout de CO_2 au carburant H_2/CO cause bien pour sa part une diminution linéaire du Pe_{cr} . Toutefois, la théorie sous-estime les valeurs expérimentales. La capacité de la théorie à reproduire les tendances tout en étant éloignée des valeurs mesurées avait précédemment été rapportée par Jomaas et al. (2007) pour l’acétylène et le propane et par Okafor et al. (2016) pour des carburants H_2/CH_4 .

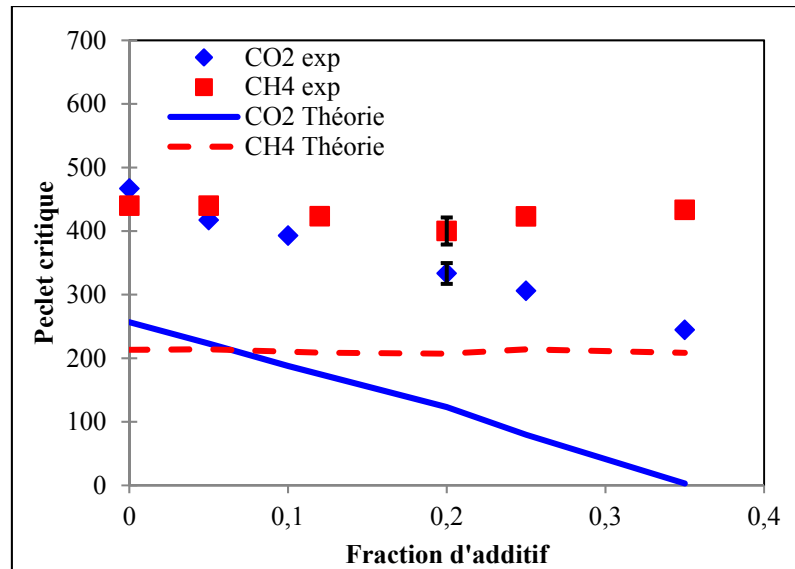


Figure 5.9 Impact de l’ajout de CH_4 et de CO_2 sur les Pe_{cr} théorique et expérimental

La Figure 5.10 compare les résultats expérimentaux aux prédictions théoriques pour l'ensemble des carburants (matrices de test M1, M2 et M3) testés dans cette thèse. La tendance linéaire, avec pente d'environ 1, observée entre les prédictions et les résultats expérimentaux montre que la théorie parvient à reproduire correctement les tendances expérimentales, et ce indépendamment de l'épaisseur de la flamme, du Le_{eff} ou de la présence d'instabilité thermodiffusive dès la naissance de la flamme. La Figure 5.10 montre néanmoins que la théorie sous-estime le Pe_{cr} pour l'ensemble des flammes.

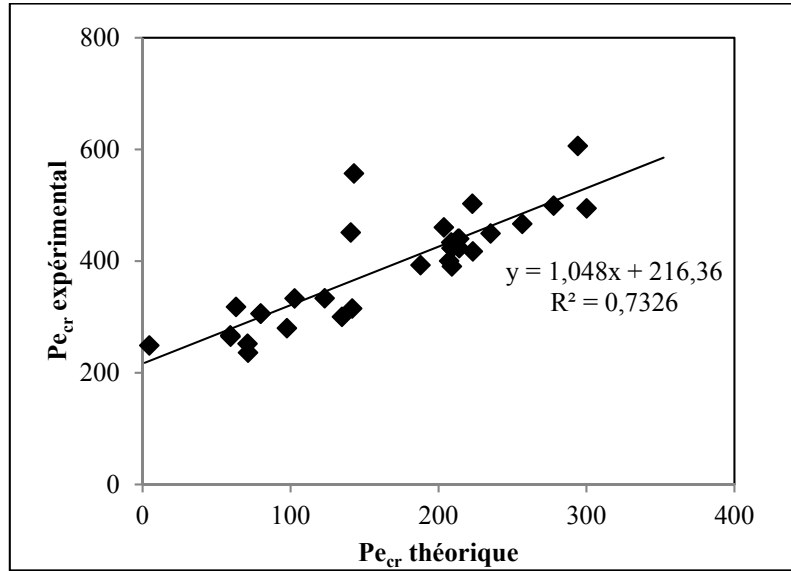


Figure 5.10 Comparaison entre les Pe_{cr} théorique et expérimental de toutes les flammes testées

L'idée derrière l'équation (5.6) est que Pe_{cr} peut être exprimé par la somme des instabilités hydrodynamiques et thermodiffusives. Cette idée est maintenant reprise afin de proposer une corrélation empirique qui parvient à prédire à la fois les tendances et les valeurs absolues de Pe_{cr} . Cette corrélation, établie en utilisant les résultats obtenus sur les carburants des trois matrices de tests, est donnée à l'équation (5.7).

$$Pe_{cr} = \sigma(5.21 + 104.7Pr) + 248.1 \frac{Ze(Le - 1)}{(\sigma - 1)} \quad (5.7)$$

La Figure 5.11A montre que la corrélation prédit correctement les résultats expérimentaux. Le coefficient de corrélation entre les prédictions et les données expérimentales atteint $R^2 = 0,86$.

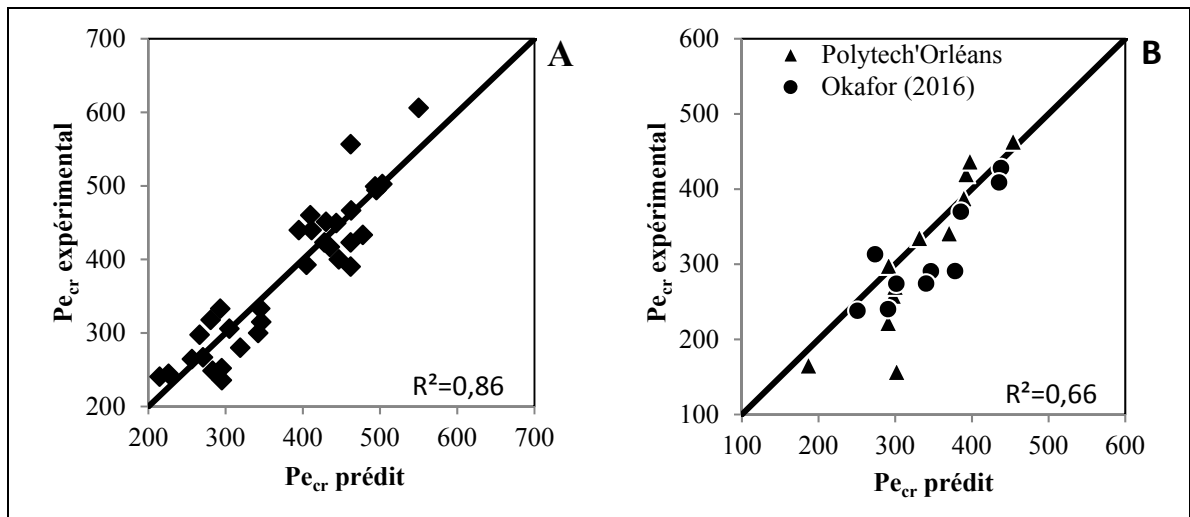


Figure 5.11 Pe_{cr} calculé avec la corrélation et comparé aux résultats expérimentaux A) des matrices de tests M1, M2 et M3; B) de mesures effectuées à Polytech'Orléans et de Okafor et al. (2016)

L'efficacité de la corrélation a aussi été testée sur des données expérimentales obtenues au cours d'un stage effectué à l'université Polytech'Orléans. Ces tests ont été réalisés sur les carburants syngas- CO_2 présentés au Tableau 5.4. Les détails du montage, qui utilise la technique de l'ombroscopie pour suivre le front de flamme, sont présentés dans la littérature (Tahtouh et al., 2009; Togbé, Dagaut, Halter et Foucher, 2011). La Figure 5.11B montre que la corrélation prédit encore une fois correctement les résultats expérimentaux. L'exactitude de la corrélation ne dépend donc pas du montage ou de la technique expérimentale retenue.

Afin de pleinement évaluer l'efficacité de la corrélation, une comparaison supplémentaire a été réalisée sur les carburants H_2/CH_4 de Okafor et al. (2016). Ces résultats ont été choisis parce qu'ils permettent d'évaluer la corrélation sur des carburants H_2/CH_4 qui n'ont pas été testés dans cette thèse. De plus, Okafor et al. (2016) présentent des résultats à 1, 3 et 5 MPa. Comme indiqué dans la revue de littérature (section 1.3.1.3), changer la pression initiale a respectivement un impact faible et nul sur σ et Le_{eff} . Par contre, la hausse de la pression

diminue fortement l_f et cause donc un impact important sur Pe_{cr} . La Figure 5.11B permet de voir que la corrélation prédit correctement les résultats de Okafor et al. (2016). La corrélation peut donc être utilisée sur des carburants à base de H_2/CH_4 et pour des pressions variant entre 1 et 5 MPa.

Tableau 5.4 Matrice des tests effectués à Polytech'Orléans

Étiquette	H ₂	CO	CO ₂	CH ₄	ϕ	Le_{eff}	l_f	σ	R_{cr}
							(mm)		(mm)
P'O1a	50	25	25	0	0,8	0,65	0,0757	6,08	19,55
P'O1b	50	25	25	0	1,0	0,72	0,0559	6,46	18,74
P'O1c	50	25	25	0	1,2	0,86	0,0449	6,35	18,86
P'O2a	37,5	37,5	25	0	0,8	0,63	0,0682	6,02	10,72
P'O2b	37,5	37,5	25	0	1,0	0,73	0,0488	6,42	13,20
P'O2c	37,5	37,5	25	0	1,2	0,96	0,0388	6,28	15,06
P'O3a	25	50	25	0	0,8	0,57	0,0604	5,96	10,01
P'O3b	25	50	25	0	1,0	0,75	0,0429	6,38	12,78
P'O3c	25	50	25	0	1,2	1,08	0,0334	6,21	14,61
P'O4a	42,5	42,5	15	0	0,8	0,70	0,0567	6,25	12,61
P'O4b	42,5	42,5	15	0	1,0	0,84	0,0411	6,65	14,03
P'O4c	42,5	42,5	15	0	1,2	1,12	0,0325	6,59	15,06

5.5 Conclusion

Plusieurs mesures ont été effectuées sur des carburants $H_2/CO/CO_2/CH_4$ afin d'étudier l'impact de la composition du carburant sur les instabilités d'une flamme en expansion sphérique. Les résultats ont montré que la stabilité des flammes suffisamment proche de l'état équidiffusif ($Le_{eff} \sim 1$) est principalement contrôlée par la variation de l'épaisseur de flamme. Ainsi, l'ajout de CH_4 dans le syngas, qui cause une augmentation de l_f , favorise la stabilité et accroît R_{cr} . Même si le ratio d'expansion thermique est à l'origine des instabilités hydrodynamiques, il n'a qu'une faible incidence sur le moment où les cellules apparaissent.

Toutefois, l'augmentation de l_f occasionnée par l'ajout de CO_2 dans le syngas, bien que similaire à l'augmentation de l_f occasionnée par l'ajout de CH_4 , n'augmente pas la stabilité puisque son effet est contrebalancé par une augmentation des instabilités thermodiffusives due à la décroissance de Le_{eff} . Le résultat net est que l'ajout de CO_2 n'affecte pas R_{cr} .

Comme pour d'autres études, il est observé que l'apparition de cellules cause une autoaccélération de la flamme, sans toutefois mener à l'autoturbulence. Il est toutefois observé ici que le coefficient d'autoaccélération est plus élevé quand la flamme est déstabilisée par le mécanisme thermodiffusif, ce qui donne un critère permettant de distinguer la nature du mécanisme ayant déstabilisé la flamme. De plus, au moment de l'apparition des cellules, la vitesse locale d'une flamme déstabilisée par le mécanisme hydrodynamique n'est jamais plus de 15% supérieure à la vitesse laminaire de flamme. Au contraire, cette vitesse locale est d'au moins 15% supérieure à la vitesse laminaire de flamme chez les flammes déstabilisées par le mécanisme thermodiffusif.

Finalement, bien que la théorie asymptotique permette de reproduire qualitativement les tendances expérimentales notées sur le Pe_{cr} , elle prédit une déstabilisation plus précoce du front de flamme. Conséquemment, une corrélation suivant le format indiqué par Jomaas et al. (2007) est proposée pour prédire le Pe_{cr} correspondant aux mesures expérimentales. Cette corrélation est la somme d'un premier Pe , dépendant uniquement de σ , associé aux instabilités hydrodynamiques et d'un deuxième Pe représentant l'aspect thermodiffusif associé à Ze et Le_{eff} .

DISCUSSION ET CONCLUSION

Le syngas est un carburant synthétique produit par la gazéification de charbon ou de biomasse. Le syngas est idéalement composé exclusivement de H_2 et de CO avec un ratio H_2/CO élevé. Dans la pratique toutefois, le syngas contient généralement aussi du CO_2 et du CH_4 , et le ratio H_2/CO peut varier entre 1/3 et 3/1. Cette variabilité dans la composition du syngas a des effets marqués sur la combustion. En effet, les propriétés du carburant et de la flamme, telles que le pouvoir calorifique, la vitesse de flamme, la température de la combustion et la stabilité de la flamme, dépendent de la composition du carburant. Connaître la valeur de ces propriétés est nécessaire pour la conception des chambres de combustion et des injecteurs.

La vitesse de laminaire flamme, mesurée au CHAPITRE 3, est importante de façon générale au design des chambres de combustion. Par exemple, si le débit de carburant nécessaire pour obtenir la quantité d'énergie désirée est déterminé grâce au pouvoir calorifique (soit la quantité d'énergie contenue dans un kilogramme de carburant), c'est la vitesse de flamme qui dicte la taille des injecteurs. En effet, le débit de carburant doit être fourni à une vitesse avoisinant la vitesse de flamme (vitesse laminaire pour les cuisinières ou encore BBQ ou vitesse turbulente dans les turbines à gaz par exemple) afin d'éviter le soufflement ou le retour de flamme. La vitesse laminaire est aussi l'une des principales propriétés servant à valider les modèles numériques.

Bien que cette thèse se soit concentrée sur les flammes laminaires, les résultats sont aussi pertinents pour les flammes turbulentes. En effet, les caractéristiques de temps et de structure des flammes turbulentes, identifiées respectivement par le nombre de Damköhler et le nombre de Karlovitz turbulent, dépendent de la vitesse laminaire de flamme. Ces caractéristiques servent à identifier dans quel régime de turbulence la flamme se situe, ce qui donne entre autres des informations sur la consommation en carburant et sur la vitesse de flamme turbulente. Plusieurs modèles simples ont été développés pour calculer la vitesse turbulente de la flamme, mais tous se basent sur la vitesse laminaire (voir entre autres les

modèles dans Turns (2011, p. 466)). Les logiciels de mécanique des fluides numérique utilisent de tels modèles et des modèles plus complexes (« flamelet model ») pour réaliser les simulations. Or ces modèles numériques ont besoin de connaître la vitesse laminaire de flamme et d'utiliser des cinétiques chimiques capables de prédire correctement les vitesses de flammes laminaires. C'est pourquoi il est nécessaire, même pour la conception en écoulement turbulent, d'avoir des cinétiques chimiques correctement validées par la vitesse laminaire de flamme, telle que la cinétique GRI-Mech modifiée proposée au CHAPITRE 3. L'utilisation de ces modèles numériques permet la conception ou encore l'étude 3D des écoulements turbulents qu'on le retrouve dans les chambres de combustion de turbines à gaz, moteur à combustion interne, etc.

D'autre part, même si un écoulement turbulent déstabilise la flamme sans l'action des mécanismes hydrodynamique et thermodiffusif, ces mécanismes continuent d'influencer la flamme. Le Le est connu pour avoir un impact significatif sur la structure de la flamme turbulente (si le Le est suffisamment faible, le mécanisme thermodiffusif amplifiera les plissements de la flamme turbulente (Goix et Shepherd, 1993)) et donc sur la vitesse de flamme turbulente (Kobayashi, Kawabata et Maruta, 1998). L'effet du nombre de Lewis est d'ailleurs inclus et étudié dans certains modèles de combustion en simulation numérique (Bell, Cheng, Day et Shepherd, 2007; Dinkelacker et al., 2011; Regele, Knudsen, Pitsch et Blanquart, 2013; Savard et Blanquart, 2014), ce qui nécessite une prédiction précise du Le en fonction de la composition pour les carburants comprenant plusieurs combustibles.

Finalement, le CHAPITRE 5 a permis d'étudier les flammes intrinsèquement instables à cause des mécanismes hydrodynamique et thermodiffusif. De par l'action de ces mécanismes, la flamme se déstabilise par elle-même même dans un écoulement parfaitement laminaire. Cette déstabilisation mène à l'apparition de cellules sur le front de flamme. Ces cellules sont en fait des plissements, réguliers ou non, qui augmentent l'aire de la flamme. Grâce à cette surface additionnelle, plus de carburant est brûlé, ce qui augmente la vitesse de flamme. La vitesse de la flamme n'est alors plus la vitesse laminaire discutée plus haut. Une des conséquences possibles des instabilités est que les plissements font osciller la flamme, ce

qui engendre des ondes sonores qui rendent la combustion bruyante. Ces oscillations peuvent devenir destructrices si leur fréquence entre en résonance avec la fréquence naturelle de la chambre à combustion.

Une autre application de cette étude est qu'elle permet de mieux identifier les carburants sujets aux instabilités hydrodynamiques, qui impactent aussi le front de flamme turbulent, particulièrement à de faibles intensités de turbulence (flamme plissée). Selon Creta et Matalon (2011), la résilience initiale de la flamme aux instabilités hydrodynamiques suggère que le front de flamme se comporte différemment avant et après la perte de stabilité due à ce mécanisme. L'ondulation initiale d'un front de flamme turbulent résiste à toute déformation supplémentaire tant que les instabilités hydrodynamiques ne sont pas déclenchées. La flamme est alors oscillante, mais sa vitesse est similaire à la vitesse laminaire de flamme. Par contre, la présence d'instabilités hydrodynamiques déforme le front, ce qui cause une augmentation de la vitesse. L'impact de la composition du carburant sur la résistance du front aux instabilités hydrodynamiques demeure ainsi pertinent en écoulement turbulent.

Ainsi, cette étude des mécanismes hydrodynamique et thermodiffusif est nécessaire afin de trouver des outils permettant de déterminer si et quand le syngas autour duquel la chambre à combustion est conçue développera de telles oscillations. La confirmation de l'apparition d'instabilités cellulaires imposera une réévaluation de la conception afin de s'assurer que la flamme se maintient hors des conditions de soufflement et de retour de flamme et que les oscillations n'engendrent pas d'effets indésirables. Cette réévaluation de la conception est particulièrement nécessaire lors d'adaptation de chambres de combustion existantes (et donc prévues initialement pour brûler un carburant autre que le syngas). Cette réévaluation se fera entre autres grâce aux modèles numériques ci-haut mentionnés en incorporant la cinétique chimique validée pour la vitesse de flamme des syngas au CHAPITRE 3 et la méthode de calcul du nombre de Lewis d'un carburant comprenant plusieurs combustibles présentée au CHAPITRE 4 afin de maximiser la précision des résultats.

Conclusion

L'objectif de cette thèse était donc de caractériser l'impact de la composition du syngas sur la vitesse laminaire de flamme et sur l'apparition des instabilités cellulaires. Ce travail a été divisé en trois parties. Dans la première partie, un montage a été conçu afin de mesurer la vitesse de flamme (S_u). Sur ce montage, une flamme était stabilisée sur un brûleur Bunsen et photographiée par la technique de chimiluminescence OH^* . Il est observé que la diminution du ratio H_2/CO , l'ajout de CO_2 et l'ajout de CH_4 causent une diminution de la vitesse de flamme. Il est aussi noté que le maximum de S_u est atteint à une richesse de plus en plus élevée quand le ratio H_2/CO diminue tandis que le maximum de cette vitesse se déplace vers des richesses plus faibles lors d'un ajout de CO_2 ou de CH_4 . Contrairement à plusieurs autres études, ce déplacement de $S_{u,max}$ est ici mesuré avec précision puisque le pas de richesse est maintenu fin (pas de 0,1) sur toute la plage de richesse étudiée. L'ajout de CO_2 diminue la diffusivité thermique et limite fortement sa croissance en fonction de φ . La réduction du préchauffage des gaz frais aux richesses élevées est donc responsable du déplacement de $\varphi_{S_{u,max}}$ vers les mélanges plus pauvres.

Les vitesses de flamme et le déplacement de $\varphi_{S_{u,max}}$ sont bien prédits par les cinétiques chimiques testées, soient GRI-Mech 3.0, Davis et USC Mech II, pour les carburants H_2/CO et lors d'un ajout de CO_2 . Lors de l'ajout de CH_4 , GRI-Mech 3.0 et USC Mech II (la cinétique de Davis ne contient pas la chimie du CH_4) prédisent correctement S_u dans les mélanges pauvres et légèrement riches. Toutefois, le déplacement de $\varphi_{S_{u,max}}$ prédit par les cinétiques survient plus tôt que ce qui est observé, ce qui fait que les cinétiques sous-estiment les vitesses à $\varphi \geq \varphi_{S_{u,max}}$. Les résultats de cette thèse montrent toutefois qu'une version de la cinétique GRI-Mech 3.0, modifiée selon les recommandations de Vu et al. (2011b), permet de correctement prédire les vitesses et le déplacement du maximum de vitesse des carburants syngas-méthane. Vu et al. (2011b) ayant effectué des mesures sur un petit nombre de carburants $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2/\text{CH}_4/\text{N}_2$, ils leur étaient impossible de déterminer si l'erreur dans GRI-Mech 3.0 est due à une espèce en particulier, ou si elle est causée par la complexité inhérente d'une combustion impliquant cinq combustibles. Cette thèse montre

que l'erreur survient dès que du CH_4 , même en faible proportion, est ajouté dans un carburant H_2/CO . Du point de vue de la combustion fondamentale, cette observation montre que certaines réactions fondamentales doivent être réévaluées en fonction des carburants $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CH}_4$. D'un point de vue pratique, cette modification permet d'avoir une prédiction précise de S_u lors de conception en mélanges riches, par exemple pour les chambres de combustion fonctionnant sous le principe « combustion riche, refroidissement rapide, combustion pauvre ». L'utilisation de cette modification est recommandée pour les carburants $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CH}_4$ contenant jusqu'à 40% de CH_4 . Finalement, une corrélation a été établie pour prédire S_u en fonction de la composition du carburant, de la richesse et de la température initiale. Ce travail a donné lieu à un article de journal (International Journal of Hydrogen Energy, 39 (2014) 3477-3486).

Pour les deuxième et troisième parties, un montage intégrant une bombe à combustion avec visualisation par striescopie a été conçu. Des images de l'expansion du front de flamme sphérique sont enregistrées par une caméra haute vitesse. Ces images sont analysées par un code MATLAB qui identifie le front de flamme et en détermine le rayon.

La deuxième partie traite du calcul du nombre de Lewis effectif dans un carburant comprenant plusieurs combustibles. Ce nombre représente le ratio entre la diffusivité thermique du mélange et la diffusivité massique du réactif déficient. Ce travail montre que la diffusivité massique moyennée doit être préférée à la diffusivité massique binaire et qu'il faut tenir compte des caractéristiques de diffusion de chacun des combustibles pour calculer Le_{eff} . Afin de permettre une comparaison des méthodes de calculs de Le , l'identification d'une méthodologie d'extraction du Le expérimental a été préalablement effectuée. Plusieurs méthodes d'extraction existent dans la littérature et elles n'ont jamais, à ma connaissance, fait l'objet d'une comparaison. Ce travail montre qu'en fonction des combustibles présents et de leur proportion respective, la formule d'extraction de Bechtold et Matalon (2001) ou la formule d'extraction de Chen (Chen et al., 2009) doit être utilisée.

Il existe trois méthodes dans la littérature pour calculer le Le_{eff} d'un carburant comprenant plusieurs combustibles. Une première comparaison entre ces méthodes (Bouvet et al., 2013) n'avait permis d'identifier une méthodologie efficace que pour les carburants H_2 /alcane pauvres. À partir des présents résultats expérimentaux, il a été possible d'identifier la méthodologie de calcul du Le_{eff} qui fonctionne également pour les carburants H_2/CO , et qui est validée pour les mélanges riches. Les résultats ont montré que Le_{eff} doit être calculé en trois étapes: 1) calculer le Le de chaque combustible à une richesse φ_i représentative de la proportion d'air disponible pour brûler ce combustible. De plus, il a été proposé, pour les mélanges riches en carburant, de calculer un Le de l'oxygène pour chaque combustible du mélange; 2) mélanger les Le de chaque combustible (ou, pour les mélanges riches, les Le de l'oxydant se diffusant vers chaque combustible) avec la règle volumique; et 3) combiner, pour les mélanges proches de la stœchiométrie ($0,8 \leq \varphi \leq 1,0$), le Le_{eff} du mélange de combustible avec le Le_{eff} de l'oxygène afin d'obtenir le Le_{eff} final. Ce travail a été accepté en 2017 dans le journal International Journal of Hydrogen Energy (Lapalme et al., 2017).

La troisième partie s'intéresse à l'apparition de cellules sur le front de flamme. Une approche originale, dans laquelle une matrice de tests est établie non pas en fonction de la composition du carburant, mais de ses propriétés significatives (Le_{eff} et l_f), a permis de noter que le Le critique en dessous duquel la flamme est instable au regard du mécanisme thermodiffusif varie en fonction du l_f du carburant. Il a été aussi observé que l'ajout de CH_4 dans un carburant H_2/CO permet de retarder l'apparition des cellules grâce à une augmentation de l'épaisseur de flamme. Les carburants $H_2/CO/CH_4$ étudiés étaient par contre tous pratiquement équidiffusif ($Le_{eff} \sim 1$), et le Le est demeuré indépendant de la concentration de CH_4 . Le R_{cr} n'est par contre pas affecté par l'ajout de CO_2 dans un carburant H_2/CO , et ce même si l'ajout de CO_2 cause une augmentation de l'épaisseur de flamme similaire à celle causée par l'ajout de CH_4 . Cette différence de comportement s'explique par le fait que l'ajout de CO_2 cause une diminution de Le_{eff} qui équilibre les effets de la hausse de l'épaisseur de flamme même si elle est proportionnellement inférieure à l'augmentation de l'épaisseur de flamme. Tel que noté par plusieurs autres études, il est observé que le développement de cellules cause une autoaccélération de la flamme.

Toutefois, à la différence des autres études, il est ici observé que les flammes ne subissant que des instabilités hydrodynamiques présentent une plus faible autoaccélération que les flammes subissant des instabilités thermodiffusives avant l'apparition des instabilités hydrodynamiques. Cette observation a permis de définir un critère servant à identifier la nature des instabilités subies par la flamme. Finalement, une corrélation est proposée pour prédire le moment où les cellules hydrodynamiques apparaissent. Cette corrélation comprend un premier terme représentant les instabilités hydrodynamiques et qui ne dépend que du ratio d'expansion thermique et un second terme représentant les instabilités thermodiffusives et qui dépend du nombre de Zel'dovich, de Le_{eff} et du ratio d'expansion thermique.

Contrairement au gaz naturel ou au kérosène, dont les propriétés sont connues et fixes parce que leur composition fait l'objet de norme, la composition du syngas varie à chaque nouvelle matière première et chaque technologie de gazéification choisie. Ce projet a permis de caractériser l'impact de la composition d'un syngas sur sa vitesse de flamme et l'apparition d'instabilités cellulaires. Des corrélations sont proposées afin de fournir aux concepteurs un outil simple, rapide et efficace leur donnant des valeurs préliminaires à partir desquelles ils peuvent orienter leur conception. Cette thèse permet également d'encadrer le calcul du nombre de Lewis d'un carburant comprenant plusieurs combustibles. Finalement, cette thèse a permis d'améliorer une cinétique chimique fréquemment utilisée dans les simulations numériques.

RECOMMANDATIONS

Les analyses menées dans cette thèse ont permis d'identifier certains points qui mériteraient des recherches plus approfondies.

Concernant tout d'abord la vitesse laminaire de flamme, des mesures supplémentaires effectuées à des richesses supérieures à $\varphi = 2,2$ sont nécessaires pour confirmer la richesse où CO atteint sa vitesse maximale. Ces mesures indiqueraient le rythme avec lequel $\varphi_{Su=max}$ se déplace et permettrait de savoir si le déplacement est linéaire ou non-linéaire. Ces mesures serviraient ultimement à raffiner les cinétiques chimiques. À ce sujet, la modification de la cinétique GRI-Mech 3.0 proposée dans cette thèse n'est valide que pour les syngas contenant moins de 40% de CH₄. Autrement, la cinétique originale doit être utilisée. Des études cinétiques supplémentaires sont nécessaires afin de créer la cinétique « GRI-Mech 4.0 », une cinétique valide pour toute la plage de CH₄. Entre-temps, les autres cibles de validation des cinétiques, nommément les délais à l'allumage et la structure de la flamme, doivent être validées sur la cinétique GRI-Mech 3.0 modifiée.

Concernant le calcul du Lewis effectif d'un carburant, l'influence du CO₂ sur le Lewis du H₂ n'a pu être correctement estimée. Le rôle des diluants non réactifs (par exemple: CO₂, N₂, He) sur le Le_{eff} de carburants composés de deux combustibles doit faire l'objet d'études complémentaires. Bien que la méthode de calcul du Le_{eff} proposée soit plutôt précise, elle demeure imparfaite. Le calcul basé sur la proportion volumique de chaque combustible est validé théoriquement pour plusieurs propriétés, mais pas pour Le . La seule étude théorique sur le mélange de Le a introduit la règle de mélange basé sur le dégagement de chaleur. Les résultats obtenus avec cette règle ne correspondent cependant pas aux résultats expérimentaux. Une explication théorique de l'efficacité de la règle volumique permettrait de mieux comprendre la diffusion dans des carburants comprenant plusieurs combustibles.

Par ailleurs, l'étude du rôle du Lewis sur les instabilités thermodiffusives et R_{cr} peut être raffinée en extrayant expérimentalement le Le de chaque carburant étudié. Pour ce faire, il

faudrait que la flamme soit enregistrée à une plus grande vitesse d'acquisition afin d'avoir suffisamment de points de mesure dans la zone stable pour réaliser l'extraction. Alternativement, puisque Le est indépendant de la pression, un autre moyen d'extraire Le serait de refaire les mesures à une pression plus faible, et donc sur des flammes plus stables. Enfin, les résultats montrent que la vitesse de la flamme s'autoaccélère sous l'impulsion des instabilités cellulaires. La caractérisation de cette vitesse cellulaire n'est cependant pas possible avec le post-traitement actuellement utilisé. En effet, celui-ci calcule le rayon de la flamme en utilisant le plus petit cercle englobant entièrement la flamme. Sur une flamme instable, ce cercle se forme donc toujours les crêtes les plus intenses et par conséquent, le post-traitement ne permet pas de capter l'oscillation du front de flamme. La vitesse de déplacement du rayon moyen de la flamme instable est plus représentative de la vraie vitesse de la flamme. Ce rayon moyen s'obtient à partir de l'aire réelle du front de flamme, qui peut être calculée en modifiant le post-traitement afin que le contour du front de flamme soit parfaitement épousé. Une analyse similaire à celle du régime turbulent pourra alors être réalisée.

ANNEXE I

CALCUL DE L'INCERTITUDE DE LA RICHESSE

La richesse est le rapport entre le ratio massique carburant-air réel $((F/A)_{exp})$ et le ratio massique carburant-air stœchiométrique $((F/A)_{st})$:

$$\varphi = \frac{(F/A)_{exp}}{(F/A)_{st}} \quad (I.1)$$

Le ratio stœchiométrique est théorique et n'a pas d'incertitude. Le ratio réel est déterminé par l'expérimentateur en assignant un débit à chaque gaz. L'incertitude sur la richesse est liée à l'incertitude du débit fourni par chacun des débitmètres. Afin de mettre les débits en évidence, on réécrit l'équation. (I.1):

$$\varphi = \frac{\frac{\sum_{e=1}^C \rho_e Q_e}{\rho_{air} Q_{air}}}{(F/A)_{st}} = \frac{\frac{\sum_{e=1}^C \frac{P}{R_e T} Q_e}{\frac{P}{R_{air} T} Q_{air}}}{(F/A)_{st}} \quad (I.2)$$

où ρ est la masse volumique et Q le débit volumique de chaque espèce e composant le carburant C . En appliquant la loi des gaz parfaits, on peut réécrire ρ en fonction de la pression P , température T et constante des gaz R_e :

$$\varphi = \frac{\frac{\sum_{e=1}^C \frac{P}{R_e T} Q_e}{\frac{P}{R_{air} T} Q_{air}}}{(F/A)_{st}} \quad (I.3)$$

La pression et la température étant constantes au laboratoire, l'équation finale devient:

$$\varphi = \frac{\frac{\sum_{e=1}^c \frac{Q_e}{R_e}}{\frac{Q_{air}}{R_{air}}}}{(F/A)_{st}} \quad (I.4)$$

Dans le présent exemple sur le S50, il y a trois variables, soient les débits de H₂, CO et d'air. Les incertitudes sur les débits (I_Q), présentées au Tableau-A I-1, dépendent des erreurs de lecture spécifiées par le manufacturier des débitmètres. Maintenant que l'incertitude de chacune des variables est connue, on applique la méthode de la section 2.2.2 pour propager ces incertitudes individuelles sur la richesse. En appliquant l'équation (I.6) avec les valeurs du Tableau-A I-2, on trouve une incertitude sur la richesse de 0,0885 ou 8,85 %. Globalement, pour l'ensemble des tests, l'incertitude sur la richesse varie entre 5,1% et 24,0%. Cette incertitude élevée survient lorsque le débit de H₂ ou de CO nécessaire est supérieur à 1,0 litre/min. Il faut en effet dans ces cas-là mesurer le débit avec un débitmètre FMA 5423, qui a une incertitude plus élevée.

$$I_\varphi = \sqrt{\left(\frac{d\varphi}{dQ_{H_2}} I_{Q_{H_2}}\right)^2 + \left(\frac{d\varphi}{dQ_{CO}} I_{Q_{CO}}\right)^2 + \left(\frac{d\varphi}{dQ_{air}} I_{Q_{air}}\right)^2} \quad (I.5)$$

$$I_\varphi = \sqrt{\left(\frac{R_{air}}{Q_{air}R_{H_2}(F/A)_{st}} I_{Q_{H_2}}\right)^2 + \left(\frac{R_{air}}{Q_{air}R_{CO}(F/A)_{st}} I_{Q_{CO}}\right)^2 + \left(-\frac{R_{air}(Q_{H_2}R_{H_2} + Q_{CO}R_{CO})}{Q_{air}^2 R_{H_2}R_{CO}(F/A)_{st}} I_{Q_{air}}\right)^2} \quad (I.6)$$

Tableau-A I-1 Incertitudes systématiques des débitmètres

Appareil	Plage d'opération	Erreur de lecture	Incertitude (I_Q)
FMA 5414	0-1 litre par minute	Précision: $\pm 1,5\%$ pleine échelle Répétabilité: $\pm 0,5\%$ pleine échelle	1,58 % ou 0,0158 L/min
FMA 5423	0-15 litres par minute	Précision: $\pm 1,5\%$ pleine échelle Répétabilité: $\pm 0,5\%$ pleine échelle	1,58 % ou 0,237 L/min

Tableau-A I-2 Paramètres pour les calculs des incertitudes sur la richesse

	H₂	CO	air
Débit (Q) (L/min)	0,587	0,587	2,7887
Appareil utilisé	FMA 5414	FMA 5414	FMA 5423
Constante R_e (J/kg-K)	4124	297	287
$(F/A)_{st}$	0,2185		

ANNEXE II

CALCUL DES INCERTITUDES DE LA VITESSE DE FLAMME DU BRÛLEUR BUNSEN

Dans ce travail, la chimiluminescence OH^* d'une flamme conique stabilisée sur un brûleur Bunsen a été utilisée pour mesurer la vitesse de flamme. Avec cette technique, décrite à la section 2.1.1, la vitesse de flamme se calcule ainsi:

$$S_u = \frac{Q}{A} \quad (\text{II.1})$$

où Q est le débit total des gaz et A est l'aire du cône. Il existe des incertitudes sur chacune de ces deux variables. Pour le débit volumique Q , l'incertitude I_Q est liée aux débitmètres. Il s'agit de la même incertitude que lors du calcul des incertitudes de la richesse. L'incertitude I_A de l'aire A du cône de flamme dépend pour sa part de deux facteurs. Le premier est le grandissement utilisé pour faire la conversion de pixel en mm. La mesure du grandissement (G) a été effectuée à quelques reprises tout au long des expériences et s'est toujours située à $129 \text{ pixels} \pm 1$ pour 7,5 mm, soit une incertitude de 1,55%. Le deuxième facteur d'incertitude est lié au positionnement (P) du polynôme servant à marquer la position du maximum d'intensité du OH^* . La zone d'intensité maximale dépasse rarement les 3 pixels. Ici, le maximum d'intensité a été défini comme étant le centre de cette zone. L'incertitude vient donc du fait que le polynôme aurait pu passer sur un pixel plus à l'intérieur ou un pixel plus à l'extérieur du centre. L'aire est donc recalculée en faisant passer tout le polynôme un pixel à l'intérieur et un pixel à l'extérieur par rapport à la position initiale du polynôme. L'incertitude I_{AP} résultante est définie comme étant l'écart moyen entre ces deux mesures et la mesure centrale. Le Tableau-A II-1 présente un exemple de ce calcul. Cette incertitude se situe à environ 5% pour l'ensemble des tests effectués.

Tableau-A II-1 Détails de l'estimation des incertitudes de
l'aire de la flamme

Aire centrale (m ²)	Aire intérieure (m ²)	Aire extérieure (m ²)	Incrtitude I_{AP}
6,258e-5	5,949e-5	6,489e-5	4,31%

Au final, il y a quatre variables individuelles dans le présent exemple sur le S50, soient les débits de H_2 , CO et d'air ainsi que l'aire. Le Tableau-A II-2 présente les incertitudes de ces quatre variables. On applique la méthode de propagation des erreurs de la section 2.2.2 pour calculer l'incertitude sur la vitesse de flamme (où le 1/60000 permet de convertir le débit de

L/min à m³/s). En appliquant l'équation (II.4) avec les valeurs du Tableau-A II-3, on trouve une incertitude sur la vitesse de 0,0459 m/s ou 4,3%. Globalement, pour l'ensemble des tests, l'incertitude sur la vitesse laminaire de flamme varie entre 3,6% et 6,3%.

$$S_u = \frac{Q_{H_2} + Q_{CO} + Q_{air}}{60000A} \quad (II.2)$$

$$I_{S_u} = \sqrt{\left(\frac{dS_u}{dQ_{H_2}} I_{Q_{H_2}}\right)^2 + \left(\frac{dS_u}{dQ_{CO}} I_{Q_{CO}}\right)^2 + \left(\frac{dS_u}{dQ_{air}} I_{Q_{air}}\right)^2 + \left(\frac{dS_u}{dA} I_A\right)^2} \quad (II.3)$$

$$I_{S_u} = \sqrt{\left(\frac{1}{60000A} I_{Q_{H_2}}\right)^2 + \left(\frac{1}{60000A} I_{Q_{CO}}\right)^2 + \left(\frac{1}{60000A} I_{Q_{air}}\right)^2 + \left(-\frac{(Q_{H_2} + Q_{CO} + Q_{air})}{60000A^2} I_A\right)^2} \quad (II.4)$$

Tableau-A II-2 Incertitudes systématiques affectant la mesure de la vitesse de flamme

Type	Plage d'opération	Erreur de lecture	Incertitude
Petit débit	0-1 litre par minute (FMA 5414)	Précision: $\pm 1,5\%$ pleine échelle Répétabilité: $\pm 0,5\%$ pleine échelle	1,58 % soit 0,0158 L/min
Grand débit	0-15 litres par minute (FMA 5423)	Précision: $\pm 1,5\%$ pleine échelle Répétabilité: $\pm 0,5\%$ pleine échelle	1,58 % soit 0,237 L/min
aire	N/A	Grandissement: 1,55% Positionnement: 4,31%	4,58% soit 0,2866 m ²

Tableau-A II-3 Détails de l'estimation des incertitudes de la vitesse de flamme

	H ₂	CO	air
Débit (Q) (L/min)	0,587	0,587	2,7887
Appareil utilisé	FMA 5414	FMA 5414	FMA 5423
Aire (m ²)	6,258-5		
Valeur initiale de vitesse (m/s)	1,056		

ANNEXE III

CALCUL DES INCERTITUDES DANS LA BOMBE À COMBUSTION

Cette section présente en détail le calcul des incertitudes expérimentales sur le nombre de Lewis (Le). Le carburant H100 à $\phi = 1,0$ est utilisé pour cet exemple. Pour cet exemple, le Le est extrait des données expérimentales avec la méthode Le_{BM} (équation (4.14)).

Ze et σ sont des valeurs obtenues via CHEMKIN en appliquant les définitions théoriques. L'incertitude ne vient que de la cinétique chimique utilisée. Or, celle-ci est validée et publiée sans mentionner l'incertitude. L'épaisseur de flamme l_f est aussi calculée avec des résultats CHEMKIN, sauf l_{fc} qui requiert aussi des valeurs pour k , ρ et C_p . Ces propriétés sont calculées avec des corrélations colligées dans Yaw (2012, 2013, 2014), qui ne précise pas d'incertitude. Aucune incertitude n'est donc associée à ces paramètres.

Il ne reste que l'incertitude sur L_b , qui est un paramètre mesuré expérimentalement. L'incertitude sur L_b se propage sur Le à la manière présentée à la section 2.2.2. L'équation (III.1) s'applique peu importe la méthode d'extraction choisie, tandis que l'équation (III.2) est le résultat spécifique à la méthode Le_{BM} .

$$I_{Le} = \sqrt{\left(\frac{\partial Le_{BM}}{\partial L_b} I_{L_b}\right)^2} \quad (\text{III.1})$$

$$I_{Le} = \frac{I_{L_b}}{l_f} \left[\frac{2Ze}{\sigma - 1} \left\{ \sqrt{\sigma} - 1 - \ln \left(\frac{1}{2} (\sqrt{\sigma} + 1) \right) \right\} \right] \quad (\text{III.2})$$

Il faut à ce point calculer l'incertitude sur L_b . Le cas de cet exemple à une longueur de Markstein positive. Le L_b (de même que sa vitesse laminaire de flamme) est déterminé grâce à l'équation (2.4), rappelée ici:

$$S_b = S_b^0 - \frac{2S_b^0 L_b}{R} \quad (\text{III.3})$$

Où R et S_b sont respectivement le rayon et la vitesse de propagation de la flamme en expansion sphérique mesurés suite aux acquisitions images par le système Schlieren. L'incertitude sur R dépend de deux facteurs. Le premier est le grandissement (G) utilisé pour faire la conversion de pixel vers millimètre. Le deuxième est le seuil (S) utilisé pour

différencier la flamme du fond de l'image. Pour sa part, $S_b = dR/dt$ et son incertitude dépend donc de l'incertitude sur dt ainsi que de celle sur dR qui repose encore sur le grandissement et le seuil.

Incertainitude sur le grandissement

L'incertitude sur le grandissement est une incertitude aléatoire calculée avec l'équation (2.9) à partir de la mesure initiale du grandissement et cinq mesures supplémentaires du même grandissement. Le Tableau-A III-1 détaille le calcul de l'incertitude du grandissement.

Tableau-A III-1 Détails de l'estimation des incertitudes sur le grandissement du cas H100 à $\varphi = 1,0$

mesure initiale du grandissement (mm/px)	0,22163
mesures supplémentaires	0,22356
	0,22085
	0,22624
	0,22524
	0,22522
moyenne des mesures	0,22379
constante de Student ($t_{0,95, 5}$ degrés de liberté)	2,571
I_G Incertitude sur le grandissement (mm/px)	0,002275

Incertainitude sur le rayon

Pour calculer le rayon, le programme de post-traitement compte le nombre de pixels formant la flamme, ce qui donne l'aire de la flamme en pixel², convertit l'aire en mm² grâce au grandissement, avant d'en extraire le rayon (voir équation (III.4)).

$$R = \left[\sqrt{\frac{A \pm I_S}{\pi}} \cdot (G \pm I_G) \right] \pm \frac{G}{2} \quad (\text{III.4})$$

L'incertitude sur le rayon découle donc de l'incertitude sur le grandissement calculé précédemment et de l'incertitude sur le choix du seuil (I_S). Le choix du seuil influence le nombre de pixels formant le front de flamme, certains pixels étant rejetés lorsque le seuil est augmenté. Afin d'évaluer l'incertitude liée au choix du seuil, l'aire du front de flamme est recalculée à quatre nouveaux seuils, nommément à -100, -50, +50 et +100 par rapport au

seuil nominal de 700. L'incertitude est définie comme étant l'écart maximal entre les aires des cinq mesures. Cet écart est généralement inférieur à 1% de la valeur de l'aire calculée au seuil nominal.

Finalement, un pixel représente une valeur continue de rayons. On considère que le rayon passe par le milieu du pixel, ce qui donne naissance à une incertitude égale à la moitié de la dimension d'un pixel afin de couvrir toute la plage de rayon représenté par un pixel. Cette incertitude représente $G/2$ mm. Le « $G/2$ » est déjà une incertitude et est donc simplement ajouté à l'équation (III.5) sans dérivation. L'incertitude sur le rayon I_R est donc :

$$I_R = \sqrt{\left(\frac{dR}{dA} I_S\right)^2 + \left(\frac{dR}{dG} I_G\right)^2 + \left(\frac{G}{2}\right)^2} \quad (\text{III.5})$$

$$I_R = \sqrt{\left(\frac{G}{2\sqrt{A\pi}} I_S\right)^2 + \left(\sqrt{\frac{A}{\pi}} I_G\right)^2 + \left(\frac{G}{2}\right)^2} \quad (\text{III.6})$$

Les résultats pour cet exemple sont présentés au Tableau-A III-2. L'erreur est relativement plus importante au départ, mais cela est dû au fait que le rayon est initialement très petit. Après 6 mm, l'incertitude pour ce cas-exemple et pour l'ensemble des autres cas se stabilise à moins de 2% du rayon au seuil nominal.

Tableau-A III-2 Détails de l'estimation des incertitudes sur le rayon du cas
H100 à $\varphi = 1,0$

Numéro image	Rayon (mm)	Aire (px ²)	Écart max (px ²)	dR/dA	dR/dG	I_R (% de R)
3	1,859	221	13,0	0,00421	8,39	6,73%
4	3,040	591	6,0	0,00257	13,72	3,82%
5	4,272	1167	23,0	0,00183	19,27	2,96%
6	5,557	1975	35,0	0,00141	25,07	2,41%
7	6,865	3014	4,0	0,00114	30,97	1,91%
8	8,157	4256	54,0	0,00096	36,81	1,82%
9	9,470	5736	85,0	0,00083	42,73	1,72%
10	10,825	7495	47,0	0,00072	48,84	1,48%
11	12,188	9501	79,0	0,00064	54,99	1,43%
12	13,529	11706	70,0	0,00058	61,04	1,35%
13	14,904	14207	92,0	0,00052	67,25	1,31%

Tableau-A III-3 Détails de l'estimation des incertitudes sur le rayon du cas
H100 à $\varphi = 1,0$ (suite)

Numéro image	Rayon (mm)	Aire (px ²)	Écart max (px ²)	dR/dA	dR/dG	I_R (% de R)
14	16,227	16841	125,0	0,00048	73,22	1,29%
15	17,629	19876	138,0	0,00044	79,54	1,25%
16	18,997	23082	190,0	0,00041	85,72	1,25%
17	20,402	26623	117,0	0,00038	92,06	1,18%
18	21,801	30398	194,0	0,00036	98,37	1,19%
19	23,215	34470	282,0	0,00034	104,75	1,20%
20	24,654	38874	319,0	0,00032	111,24	1,19%

Incertainitude sur S_b

L'incertitude sur la vitesse locale est issue de la propagation des erreurs sur la mesure de la différence entre le rayon de l'image actuelle et l'image précédente (dR), mesurée au seuil nominal $S = 700$, et du différentiel de temps (dt), qui vaut l'inverse de la fréquence d'acquisition.

$$S_b = \frac{dR}{dt} \quad (\text{III.7})$$

$$I_{S_b} = \sqrt{\left(\frac{dS_b}{ddR} I_{dR}\right)^2 + \left(\frac{dS_b}{ddt} I_{dt}\right)^2} \quad (\text{III.8})$$

$$I_{S_b} = \sqrt{\left(\frac{1}{dt} I_{dR}\right)^2 + \left(-\frac{dR}{dt^2} I_{dt}\right)^2} \quad (\text{III.9})$$

L'incertitude sur la fréquence d'acquisition (I_{dt}) est de 0,05% (La Vision, 2016). L'incertitude sur dR dépend des incertitudes sur le grandissement (I_G , calculé plus haut) et le seuil (I_{dRS}). Le choix du seuil, en influençant le nombre de pixels formant le front de flamme sur une image, vient à influencer la différence de pixel entre deux images consécutives. Les cinq seuils utilisés pour calculer l'incertitude sur le rayon produisent aussi 5 dR différents. L'incertitude I_{dRS} se calcule donc en combinant ces 5 dR à l'aide de l'équation (III.10). Le Tableau-A III-4 présente les cinq dR mesurés ainsi que la propagation des incertitudes depuis le choix du seuil jusqu'à la vitesse locale S_b .

$$I_{dR} = \sqrt{(I_G)^2 + (I_{dR_S})^2} \quad (\text{III.10})$$

Tableau-A III-4 Détails de l'estimation de l'incertitude de la vitesse locale du cas H100 à $\varphi = 1,0$

Numéro image	S_b (m/s)	dR (mm) à S-100	dR (mm) à S-50	dR (mm) à S	dR (mm) à S+50	dR (mm) à S+100	I_{dR_S} (mm)	I_{dR} (mm)	I_{Sb} (% de S_b)
4	12,4721	1,173	1,177	1,181	1,206	1,212	0,0226	0,0227	1,8%
5	12,5121	1,270	1,270	1,232	1,232	1,244	0,0241	0,0242	1,9%
6	12,6089	1,291	1,291	1,285	1,281	1,283	0,0053	0,0057	0,4%
7	12,7286	1,260	1,260	1,308	1,312	1,313	0,0350	0,0350	2,7%
8	12,8696	1,321	1,322	1,293	1,278	1,266	0,0314	0,0314	2,4%
9	13,0115	1,343	1,319	1,313	1,327	1,324	0,0141	0,0143	1,1%
10	13,1244	1,328	1,323	1,355	1,349	1,364	0,0219	0,0220	1,6%
11	13,2082	1,340	1,360	1,363	1,347	1,323	0,0201	0,0203	1,5%
12	13,2841	1,350	1,350	1,341	1,343	1,360	0,0095	0,0098	0,7%
13	13,3547	1,388	1,371	1,375	1,380	1,380	0,0079	0,0082	0,6%
14	13,4295	1,356	1,365	1,323	1,338	1,344	0,0202	0,0203	1,5%
15	13,5184	1,377	1,374	1,402	1,375	1,376	0,0145	0,0147	1,1%
16	13,6179	1,384	1,354	1,369	1,392	1,367	0,0184	0,0185	1,3%
17	13,7192	1,393	1,431	1,405	1,403	1,426	0,0203	0,0204	1,5%
18	13,8049	1,415	1,401	1,399	1,389	1,391	0,0127	0,0129	0,9%
19	13,8665	1,410	1,408	1,414	1,410	1,384	0,0150	0,0152	1,1%
20	13,8874	1,439	1,455	1,438	1,439	1,433	0,0104	0,0106	0,8%

Connaissant maintenant les incertitudes sur R et S_b , on peut appliquer l'équation (III.3) pour trouver L_b . L'opération est répétée 4 fois, soient à $(R-I_R; S_b)$, $(R+I_R; S_b)$, $(R; S_b-I_{Sb})$ et $(R; S_b+I_{Sb})$, donnant les L_b min et max en fonction des incertitudes sur R et S_b . L'incertitude sur L_b est donnée par la racine de la somme des carrés de la moyenne des écarts causés par I_R et I_{Sb} (voir équation (III.11)). Ces quatre L_b de même que l'incertitude I_{Lb} résultante sont donnés au Tableau-A III-5. En utilisant cette incertitude avec l'équation (III.2), on obtient une incertitude de 0,54% pour le Le du H100 à $\varphi = 1,0$. Globalement, pour l'ensemble des tests, l'incertitude sur le Le varie entre 0,2% et 3,85%.

$$I_{L_b} = \sqrt{\begin{aligned} & \text{moyenne} \left(L_{b_{R-I_R}} - L_{b_{original}}; L_{b_{R+I_R}} - L_{b_{original}} \right)^2 \\ & + \text{moyenne} \left(L_{b_{S_b-I_{S_b}}} - L_{b_{original}}; L_{b_{S_b+I_{S_b}}} - L_{b_{original}} \right)^2 \end{aligned}} \quad (\text{III.11})$$

Tableau-A III-5 Détails de l'estimation de l'incertitude de L_b du cas H100 à $\varphi = 1,0$

	Valeur originale	Valeur à ($R-I_R$; S_b)	Valeur à ($R+I_R$; S_b)	Valeur à (R; $S_b-I_{S_b}$)	Valeur à (R; $S_b+I_{S_b}$)	Incertitude
L_b (m)	3,00e-4	3,03e-4	2,94e-4	3,00e-4	3,00e-4	1,53%
S_b^0 (m/s)	13,908	13,905	13,905	14,119	13,679	1,52%

ANNEXE IV

INCERTITUDE DES FLAMMES DU CHAPITRE 3

Tableau-A IV-1 Incertitudes du carburant S25

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,7	17,6%	0,404	4,9%
0,8	12,6%	0,499	5,1%
1	10,1%	0,646	4,9%
1,2	10,5%	0,798	5,2%
1,4	11,0%	0,895	5,2%
1,6	21,4%	1,040	4,8%
1,7	20,9%	1,053	5,0%
1,8	20,4%	1,122	5,2%
1,9	20,0%	1,147	5,3%
2	19,7%	1,150	5,0%
2,2	19,2%	1,255	5,2%

Tableau-A IV-2 Incertitudes du carburant S50

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	10,2%	0,800	5,1%
1	8,9%	1,056	4,3%
1,2	8,5%	1,343	4,5%
1,4	8,1%	1,541	4,8%
1,6	8,3%	1,650	4,8%
1,7	23,3%	1,704	5,0%
1,8	22,5%	1,729	4,7%
1,9	21,9%	1,707	5,1%
2	21,3%	1,901	4,3%
2,2	20,3%	1,843	5,6%

Tableau-A IV-3 Incertitudes du carburant S75

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	8,5%	1,373	5,2%
1	6,3%	1,568	5,3%
1,2	5,9%	2,003	4,8%
1,4	5,9%	2,219	4,6%
1,6	5,8%	2,360	5,2%
1,7	5,8%	2,454	5,0%
1,8	5,8%	2,541	5,3%
1,9	6,0%	2,447	5,0%
2	6,0%	2,386	5,7%
2,2	6,1%	2,411	5,6%

Tableau-A IV-4 Incertitudes du carburant S50C10

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	10,9%	0,681	4,4%
1	9,9%	0,856	4,4%
1,2	10,1%	1,012	4,1%
1,4	9,7%	1,259	4,8%
1,6	8,6%	1,432	4,9%
1,7	8,8%	1,538	4,9%
1,8	18,5%	1,388	4,7%
1,9	18,1%	1,461	4,7%
2	17,8%	1,531	5,7%
2,2	17,2%	1,552	5,1%

Tableau-A IV-5 Incertitudes du carburant S50C20

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	13,9%	0,586	5,0%
1	11,6%	0,784	5,1%
1,2	10,8%	0,897	5,3%
1,4	10,6%	1,016	5,0%
1,6	11,1%	1,161	5,2%
1,7	11,3%	1,265	5,1%
1,8	11,6%	1,188	5,2%
1,9	11,8%	1,213	5,5%
2	12,1%	1,296	5,2%
2,2	13,5%	1,217	5,4%

Tableau-A IV-6 Incertitudes du carburant S50C30

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	16,8%	0,480	4,9%
1	13,0%	0,663	5,3%
1,2	13,0%	0,727	4,6%
1,4	12,1%	0,833	5,1%
1,5	12,5%	0,918	4,9%
1,6	12,8%	0,917	4,9%
1,7	13,2%	0,955	5,3%
1,8	13,6%	0,967	5,4%
1,9	14,0%	0,983	5,0%
2	14,3%	0,934	5,3%

Tableau-A IV-7 Incertitudes du carburant S50C40

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
1	19,6%	0,450	4,7%
1,2	17,7%	0,538	5,4%
1,3	16,8%	0,567	4,9%
1,4	16,6%	0,603	5,2%
1,5	16,6%	0,640	5,1%
1,6	17,1%	0,640	5,0%
1,7	17,7%	0,636	5,1%
1,8	18,3%	0,620	5,0%
1,9	18,9%	0,600	4,9%
2	20,2%	0,572	5,1%

Tableau-A IV-8 Incertitudes du carburant S50M5

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	5,1%	0,831	3,6%
1	8,1%	0,884	4,8%
1,2	7,8%	1,230	4,9%
1,4	8,0%	1,442	4,8%
1,6	8,2%	1,613	5,4%
1,7	8,3%	1,580	5,4%
1,8	8,4%	1,709	5,3%
1,9	8,5%	1,638	5,4%
2	8,6%	1,599	5,4%
2,2	9,2%	1,408	5,1%

Tableau-A IV-9 Incertitudes du carburant S50M20

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,8	16,4%	0,510	5,4%
0,9	13,5%	0,667	5,2%
1	11,3%	0,745	5,2%
1,1	9,5%	0,913	5,3%
1,2	9,2%	0,990	5,3%
1,3	9,2%	1,025	5,2%
1,4	9,2%	1,015	5,4%
1,5	9,2%	0,937	5,3%
1,6	9,3%	0,857	5,2%

Tableau-A IV-10 Incertitudes du carburant S50M40

Richesse		Vitesse de flamme	
valeur	incertitude	valeur (m/s)	incertitude
0,9	18,4%	0,530	6,3%
1	17,9%	0,580	5,0%
1,1	15,5%	0,662	5,6%
1,2	14,4%	0,660	5,4%
1,3	14,3%	0,656	5,5%
1,4	14,2%	0,590	5,4%
1,5	15,9%	0,487	5,0%
1,6	20,3%	0,411	5,1%

ANNEXE V

INCERTITUDE DE FLAMMES SÉLECTIONNÉES DU CHAPITRE 4

Tableau-A V-1 Incertitudes de flammes sélectionnées du CHAPITRE 4

Étiquette	φ	Le	L_b	S_b^0	I_{Le}	I_{Le}	I_{Lb}	I_{Sb0}
			(mm)	(m/s)				
H100	0,6	0,280	-4,06e-04	1,00	0,008	2,67%	-1,84%	3,11%
H100	0,8	0,880	8,92e-05	1,55	0,002	0,23%	1,54%	1,75%
H100	1	1,165	3,00e-04	2,02	0,006	0,54%	1,53%	1,52%
H100	1,2	1,682	4,94e-04	2,48	0,015	0,88%	1,44%	1,70%
H100	1,4	1,865	4,35e-04	2,63	0,072	3,85%	6,54%	2,07%
H40M60	0,6	0,757	-1,03e-03	0,180	0,0012	0,17%	-1,39%	22,8%
H40M60	0,8	0,798	1,32e-04	0,434	0,0013	0,17%	6,17%	8,6%
H40M60	1	0,900	5,04e-04	0,539	0,0014	0,16%	1,65%	4,9%
H40M60	1,2	1,028	1,03e-03	0,489	0,0037	0,36%	1,82%	8,0%
M100	0,6	0,864	6,85e-04	0,117	0,0015	0,18%	3,56%	51,0%
TM1	0,8	0,859	5,60e-04	0,315	0,0011	0,13%	1,56%	25,3%
TM1	0,9	0,876	5,97e-04	0,352	0,0133	1,52%	15,32%	17,2%
TM1	1	0,911	7,13e-04	0,327	0,0058	0,64%	5,81%	16,4%
TM1	1,1	0,925	8,51e-04	0,329	0,0055	0,60%	4,06%	12,2%
TM1	1,2	0,963	1,10e-03	0,302	0,0110	1,15%	7,30%	14,2%
SH60	0,6	0,512	-3,85e-04	0,569	0,0055	1,08%	-1,96%	6,3%
SH60	0,8	0,955	1,56e-04	0,994	0,0023	0,24%	1,55%	2,1%
SH60	1	1,073	3,24e-04	1,320	0,0049	0,46%	1,68%	2,8%
SH60	1,2	1,262	3,75e-04	1,580	0,0084	0,67%	1,69%	2,8%
SH60	1,4	1,382	3,72e-04	1,766	0,0129	0,94%	1,90%	2,0%
CO100	0,6	0,955	4,89e-04	0,162	0,0311	3,26%	15,98%	45,0%
CO100	0,8	1,012	6,44e-04	0,172	0,0333	3,30%	14,60%	32,2%
CO100	1	1,042	6,60e-04	0,231	0,0042	0,41%	1,92%	14,8%
CO100	1,2	1,077	6,62e-04	0,272	0,0329	3,06%	11,76%	15,4%
CO100	1,4	1,148	6,77e-04	0,316	0,0175	1,53%	4,07%	14,2%
SH40M40	0,6	0,761	-3,69e-04	0,180	0,0005	0,08%	-1,29%	21,2%
SH40M80	1	0,912	6,78e-04	0,403	0,0017	0,20%	1,71%	8,9%
SH80M20	1,2	1,373	3,59e-04	1,167	0,0087	0,64%	1,44%	2,6%
SH20M40	0,8	0,836	4,16e-04	0,384	0,0021	0,26%	2,47%	8,3%
SH60C10	0,8	0,663	-1,57e-04	0,74	0,0028	0,42%	-1,95%	3,9%
SH20C20	1,4	1,017	3,12e-04	0,55	0,0286	2,82%	8,01%	6,2%

ANNEXE VI

INCERTITUDE DES FLAMMES DU CHAPITRE 5

Tableau-A VI-1 Incertitudes des tests de la matrice M1

Étiquette	Incertitude I_{dR}	Incertitude I_R	Incertitude globale de R_{cr}	R_{cr} (mm)
CO2.1	5,9%	1,4%	6,1%	14,86
CO2.2	5,4%	1,4%	5,6%	14,16
CO2.3	5,0%	1,3%	5,2%	14,35
CO2.4	4,3%	2,2%	4,9%	14,46
CO2.5	3,4%	1,2%	3,6%	14,66
CO2.6	2,2%	1,2%	2,5%	15,10
CH4.1	9,8%	1,4%	9,9%	11,78
CH4.2	7,4%	1,2%	7,5%	13,19
CH4.3	5,0%	1,8%	5,3%	14,72
CH4.4	3,2%	1,3%	3,5%	16,17
CH4.5	2,5%	1,2%	2,8%	18,54
CH4.6	1,6%	1,2%	2,0%	21,69

Tableau-A VI-2 Incertitudes des tests de la matrice M2

Étiquette	Incertitude I_{dR}	Incertitude I_R	Incertitude globale de R_{cr}	R_{cr} (mm)
2.1	7,9%	1,7%	8,0%	11,02
2.2	7,8%	1,3%	7,9%	11,65
2.4	5,2%	1,2%	5,4%	15,83
2.5	3,8%	3,8%	5,4%	16,73
2.6	4,4%	1,2%	4,6%	15,29
2.7	3,6%	1,3%	3,9%	13,01
2.8	3,9%	1,2%	4,0%	14,77
2.9	1,7%	1,6%	2,3%	24,03
2.11	-	-	-	Stable
2.12	-	-	-	Stable
2.13	3,9%	3,1%	5,0%	13,65
2.14	2,3%	1,3%	2,6%	17,04
2.15	-	-	-	Stable
2.16	-	-	-	Stable
2.17	2,2%	1,1%	2,4%	16,35
2.18	-	-	-	Stable

Tableau-A VI-3 Incertitudes des tests de la matrice M3

Étiquette	Incertitude I_{dR}	Incertitude I_R	Incertitude globale de R_{cr}	R_{cr} (mm)
3.1	7,4%	6,3%	9,7%	10,90
3.2	3,9%	1,1%	4,1%	17,46
3.3	2,6%	1,1%	2,8%	14,59
3.4	-	-	-	Stable
3.5	2,0%	1,2%	2,3%	16,42
3.6	7,2%	1,6%	7,3%	11,98
3.7	-	-	-	Stable
3.8	2,6%	1,4%	2,9%	17,43
3.9	1,6%	1,1%	2,0%	23,95
3.10	0,5%	1,8%	1,9%	32,53
3.11	-	-	-	Stable
3.12	0,9%	2,4%	2,5%	22,42
3.13	1,0%	1,1%	1,5%	24,30

ANNEXE VII

PRÉDICTION DU Le_{eff} DANS DES FLAMMES H_2/CO_2

Le syngas issu de la gazéification contient souvent une quantité importante de CO_2 (voir Figure 1.3). L'effet du CO_2 est donc régulièrement évalué dans les études portant sur les flammes de syngas, y compris dans des études sur les instabilités cellulaires où le nombre de Lewis joue un rôle important. L'impact du CO_2 sur le Le du H_2 a donc été étudié. Les Le_{eff} ainsi que les Le expérimentaux des carburants H_2/CO_2 contenant jusqu'à 20% CO_2 sont présentés à la Figure-A VII-1. Puisque les concentrations de CO_2 demeurent faibles, la méthode d'extraction employée pour le H_2 pur (Le_{BM} avec l_{FG}) est conservée. La figure montre que les tendances expérimentales diffèrent complètement d'une richesse à l'autre. Globalement, l'ajout de 20% CO_2 a causé une diminution de Le_{eff} , mais cette diminution est non-linéaire avec un Le_{eff} à 10% CO_2 parfois supérieur à celui du H_2 pur ou inférieur à celui d'un carburant 80/20 H_2/CO_2 . Les mêmes méthodes employées pour calculer les Le illustrés aux Figure 4.7 et Figure 4.8 sont employés pour la Figure-A VII-1. Aucune méthode ne parvient à reproduire les résultats expérimentaux.

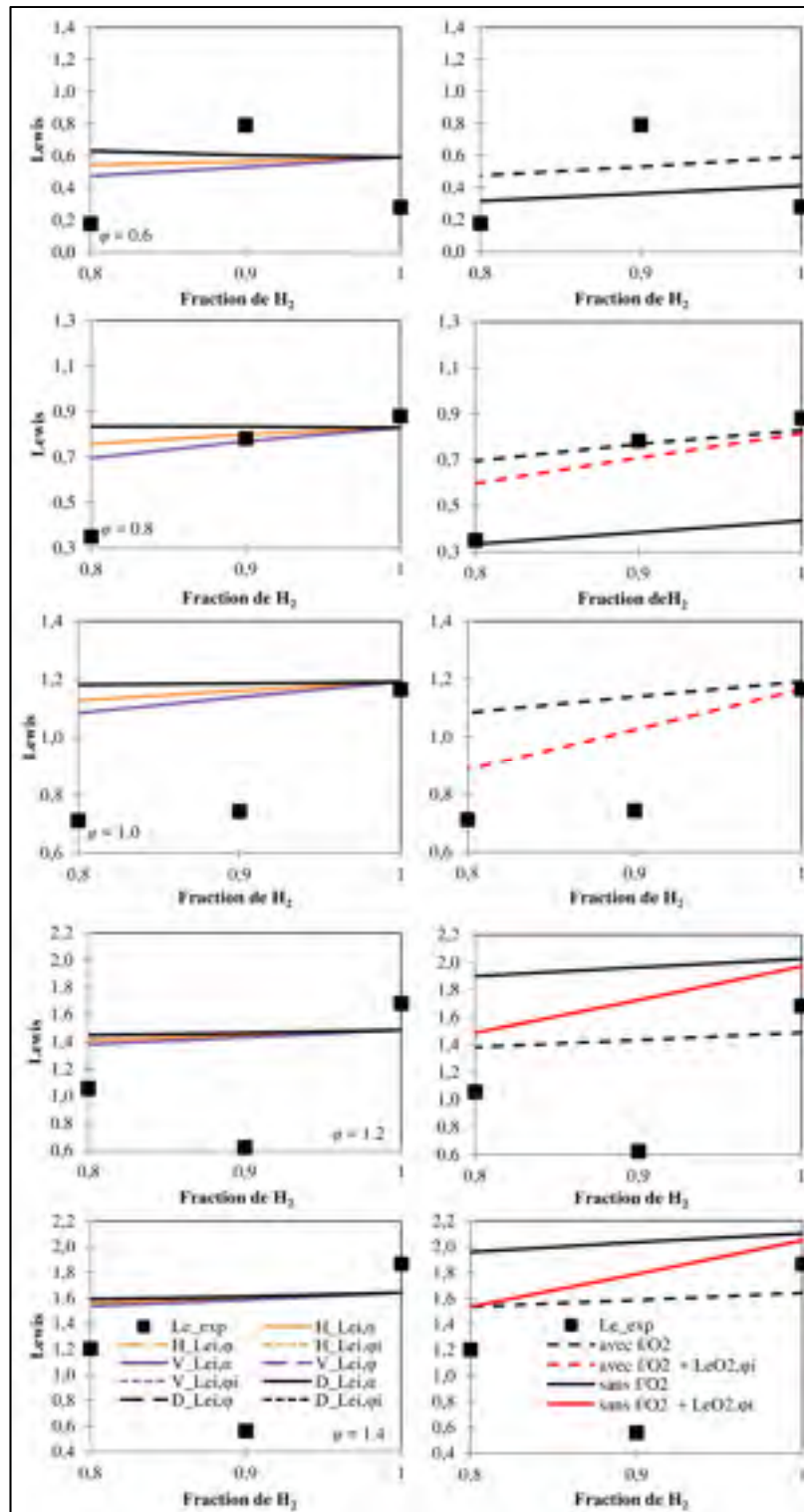


Figure-A VII-1 Comparaison des nombres de Lewis expérimentaux et empiriques des carburants H_2/CO_2

ANNEXE VIII

ÉQUATIONS POUR LE CALCUL DU Pe_{cr} THÉORIQUE

Voici les équations nécessaires à la section 5.4 pour le calcul du Pe_{cr} selon la théorie de Addabbo et al. (2002).

$$\omega = \frac{a - b + \sqrt{(b - a)^2 - 4ac}}{2a} \quad (\text{VIII.1})$$

$$\Omega = \omega^{-1} \{ Q_1 + [Ze (Le_{eff} - 1)/(\sigma - 1)] Q_2 + Pr Q_3 \} \quad (\text{VIII.2})$$

où

$$a = (\sigma + 1)n + 1 \quad (\text{VIII.3})$$

$$b = 2n^2 + (4 + 5\sigma)n + 4 \quad (\text{VIII.4})$$

$$c = -[(\sigma - 1)/\sigma]n^3 + 2n^2 + [3(\sigma + 1) - 1/\sigma]n + 2 \quad (\text{VIII.5})$$

$$\begin{aligned} Q_1 = & (\gamma_1/\sigma\Delta) [n^4(\sigma + 1) + \sigma n^3(2\omega + 5) \\ & + n^2(\omega\sigma - 2\sigma^2 + \sigma - 1) \\ & + n\sigma(\sigma - 7 - 3\omega - \sigma\omega) - 2\sigma(1 + \omega)] \\ & + (\gamma_3/\sigma\Delta)[n(n^2 - 1)(n + 2)(\sigma - 1)] \end{aligned} \quad (\text{VIII.6})$$

$$\begin{aligned} Q_2 = & (\gamma_2(\sigma - 1)/2\Delta) \times \\ & \{ 2n^4 + n^3(2\omega\sigma + 2\omega + 10\sigma - 3) \\ & + n^2[2\sigma\omega^2 + (5\sigma - 1)\omega + 3\sigma - 2\sigma^2 - 2] \\ & + n[\sigma\omega^2(1 - 4\sigma) - (14\sigma^2 + 1)\omega + 3 - 9\sigma - 8\sigma^2] \\ & + 2\sigma(\omega^2 + 4\omega + 3) \} \end{aligned} \quad (\text{VIII.7})$$

$$\begin{aligned} Q_3 = & [2n(n^2 - 1)(\sigma - 1)/\sigma\Delta] \times \\ & [(n + 2)(\tilde{\lambda}_b - \gamma_3) - 3(\tilde{\lambda}_b - 1)] \end{aligned} \quad (\text{VIII.8})$$

$$\Delta = 2a\omega + b - 2a \quad (\text{VIII.9})$$

Dans ces équations, γ sont des termes dépendant de la conductivité thermique normalisée par sa valeur dans les gaz frais $\tilde{\lambda}$. Cette dernière dépend de la température. En posant l'hypothèse réaliste $\lambda \propto T^{1/2}$ (Bechtold et Matalon, 2001), on obtient:

$$\tilde{\lambda}_b = \sqrt{\sigma} \quad (\text{VIII.10})$$

$$\gamma_1 = \frac{2\sigma}{\sqrt{\sigma} + 1} \quad (\text{VIII.11})$$

$$\gamma_2 = \frac{4}{\sigma - 1} \{ \sqrt{\sigma} - 1 - \ln[0,5(\sqrt{\sigma} + 1)] \} \quad (\text{VIII.12})$$

$$\gamma_3 = \frac{2(\sigma^{3/2} - 1)}{3(\sigma - 1)} \quad (\text{VIII.13})$$

APPENDICES

EFFET DE L'ÉTIREMENT DE LA FLAMME SUR R_{cr}

Tandis que le rayon augmente, l'étirement diminue, tel que le montre l'équation (2.3). Dans les premiers moments de la flamme, un étirement élevé aide à stabiliser le front de flamme. Toutefois, à un certain moment, l'intensité de l'étirement (plus particulièrement la courbure dans le cas d'une flamme en expansion sphérique) devient trop faible et des cellules apparaissent spontanément sur le front de flamme. Il pourrait donc être plus judicieux d'utiliser l'étirement critique afin d'exprimer l'apparition des cellules, tel que suggéré par (Bradley, Lawes et Mansour, 2009). L'étirement critique, que ce soit sous sa forme dimensionnelle (κ_{cr}) ou non-dimensionnelle (nombre de Karlovitz $Ka_{cr} = \kappa_{cr} l_f / S_u^0$) représente l'étirement minimal requis par la flamme pour maintenir la stabilité. Sous cette valeur, l'étirement n'est plus suffisamment fort pour contenir les perturbations engendrées par le mécanisme hydrodynamique, ce qui mène à l'apparition des cellules.

La Figure-B 1 regroupe les résultats des matrices M1 et M2. La figure montre que Ka_{cr} adopte un comportement différent en fonction de la nature des instabilités. Les flammes qui sont déstabilisées par le mécanisme hydrodynamique ont toutes un Ka_{cr} d'environ 0,03 qui ne semble pas dépendre de Le_{eff} .

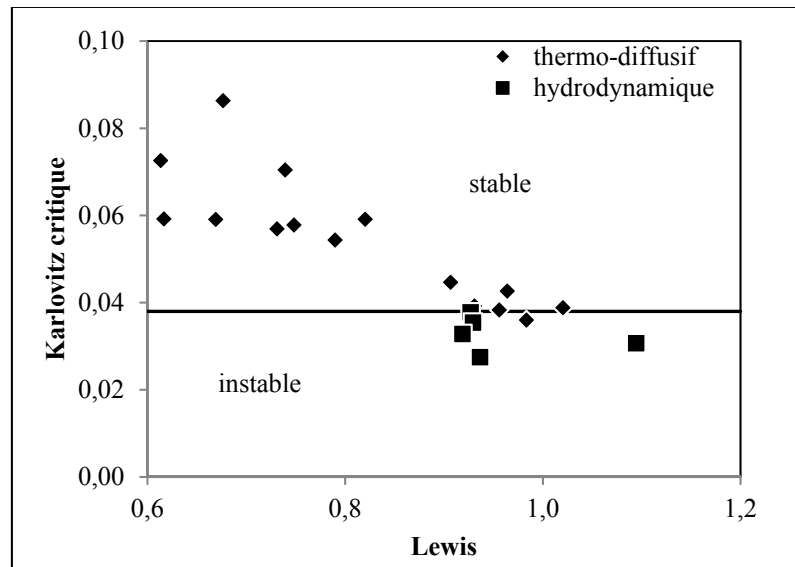


Figure-B 1 Nombre de Karlovitz critique dans les conditions d'instabilité hydrodynamique et thermodiffusive

Puisque l'étirement critique est potentiellement un critère plus pertinent pour quantifier l'apparition des cellules et qu'il permet d'identifier les flammes qui seront sujettes aux

instabilités thermodiffusives, plusieurs essais ont été menés sur les résultats des matrices M1, M2 et M3 afin d'établir un lien entre des propriétés de la flamme et l'étirement. Aucune corrélation avec un coefficient de corrélation de plus de 0,6 n'a pu être établie entre les propriétés et le Ka_{cr} . Tout au mieux, certaines propriétés du carburant corrélaient bien avec le stretch critique κ_{cr} . Entre autres, il existe une très forte corrélation, illustrée à la Figure-B 2, entre κ_{cr} et la diffusivité thermique du mélange air-carburant. Tel que mentionné plus haut, le stretch diminue quand le rayon d'une flamme en expansion sphérique augmente. Conséquemment, plus l'étirement est faible, plus R_{cr} est grand et donc plus la flamme est stable. La Figure-B 2 montre qu'une diffusivité thermique élevée favorise l'apparition hâtive des instabilités hydrodynamiques. Nous n'avons cependant pas été en mesure d'identifier le phénomène théorique permettant d'expliquer ce fort lien entre ces deux variables.

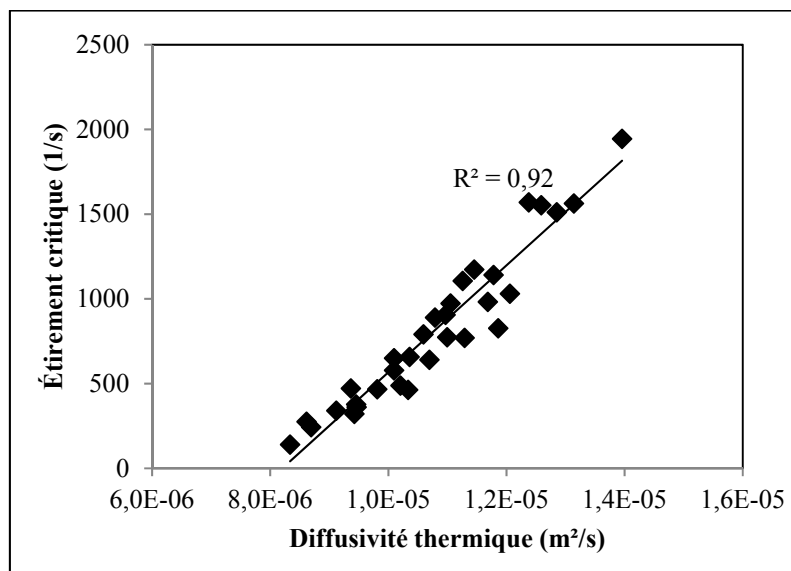


Figure-B 2 Identification d'un fort lien entre la diffusivité thermique et le stretch critique

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Addabbo, R., J. K. Bechtold et M. Matalon. 2002. « Wrinkling of spherically expanding flames ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 29, n° 2, p. 1527-1535.
- Ai, Yuhua, Zhen Zhou, Zheng Chen et Wenjun Kong. 2014. « Laminar flame speed and Markstein length of syngas at normal and elevated pressures and temperatures ». *Fuel*, vol. 137, p. 339-345.
- Ashurst, W. T. 1997. « Darrieus - Landau instability, growing cycloids and expanding flame acceleration ». *Combustion Theory and Modelling*, vol. 1, n° 4, p. 405-428.
- Bechtold, J. K., et M. Matalon. 1987. « Hydrodynamic and diffusion effects on the stability of spherically expanding flames ». *Combustion and Flame*, vol. 67, n° 1, p. 77-90.
- Bechtold, J. K., et M. Matalon. 2001. « The dependence of the Markstein length on stoichiometry ». *Combustion and Flame*, vol. 127, n° 1-2, p. 1906-1913.
- Bell, John B., Robert K. Cheng, Marcus S. Day et Ian G. Shepherd. 2007. « Numerical simulation of Lewis number effects on lean premixed turbulent flames ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, n° 1, p. 1309-1317.
- Bouvet, N., C. Chauveau, I. Gökalp, S.-Y. Lee et R.J. Santoro. 2011a. « Characterization of syngas laminar flames using the Bunsen burner configuration ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, n° 1, p. 992-1005.
- Bouvet, Nicolas, Christian Chauveau, Iskender Gökalp et Fabien Halter. 2011b. « Experimental studies of the fundamental flame speeds of syngas (H₂/CO)/air mixtures ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 33, p. 913-920.
- Bouvet, Nicolas, Fabien Halter, Christian Chauveau et Youngbin Yoon. 2013. « On the effective Lewis number formulations for lean hydrogen/hydrocarbon/air mixtures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, n° 14, p. 5949-5960.
- Bradley, D., M. Lawes et M. S. Mansour. 2009. « Explosion bomb measurements of ethanol-air laminar gaseous flame characteristics at pressures up to 1.4 MPa ». *Combustion and Flame*, vol. 156, n° 7, p. 1462-1470.
- Bradley, Derek, et C. M. Harper. 1994. « The development of instabilities in laminar explosion flames ». *Combustion and Flame*, vol. 99, n° 3-4, p. 562-572.
- Bradley, Derek. 1999. « Instabilities and Flame Speeds in Large-Scale Premixed Gaseous Explosions ». *Philosophical Transactions: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 357, n° 1764, p. 3567-3581.

- Burali, Nicholas, Simon Lapointe, Brock Bobbitt, Guillaume Blanquart et Yuan Xuan. 2016. « Assessment of the constant non-unity Lewis number assumption in chemically-reacting flows ». *Combustion Theory and Modelling*, vol. 20, n° 4, p. 632-657.
- Burbano, Hugo J., Jhon Peareja et Andrés A. Amell. 2011. « Laminar burning velocities and flame stability analysis of H₂/CO/air mixtures with dilution of N₂ et CO₂ ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, n° 4, p. 3232-3242.
- Burke, M.P., X. Qin, Y. Ju et F.L. Dryer. 2007. « Measurements of hydrogen syngas flame speeds at elevated pressures ». In *5th US Combustion Meeting organized by the Western States Section of the Combustion Institute*. (University of California at San Diego, 25-28 mars 2007).
- Burke, Michael P., Zheng Chen, Yiguang Ju et Frederick L. Dryer. 2009. « Effect of cylindrical confinement on the determination of laminar flame speeds using outwardly propagating flames ». *Combustion and Flame*, vol. 156, n° 4, p. 771-779.
- Chen, Zheng. 2011. « On the extraction of laminar flame speed and Markstein length from outwardly propagating spherical flames ». *Combustion and Flame*, vol. 158, n° 2, p. 291-300.
- Chen, Zheng, Michael P. Burke et Yiguang Ju. 2009. « Effects of Lewis number and ignition energy on the determination of laminar flame speed using propagating spherical flames ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, n° 1, p. 1253-1260.
- Cheng, Robert K. 2010. « Turbulent combustion properties of premixed syngas ». In *Synthesis Gas Combustion: Fundamentals and Applications*, sous la dir. de Lieuwen, Tim, Vigor Yang et Richard Yetter, CRC Press: Taylor and Francis Group. p. 405. Boca Raton.
- Clarke, A. 2002. « Calculation and Consideration of the Lewis Number for Explosion Studies ». *Process Safety and Environmental Protection*, vol. 80, n° 3, p. 135-140.
- Couto, Nuno, Abel Rouboa, Valter Silva, Eliseu Monteiro et Khalid Bouziane. 2013. « Influence of the Biomass Gasification Processes on the Final Composition of Syngas ». *Energy Procedia*, vol. 36, p. 596-606.
- Creta, F., et M. Matalon. 2011. « Propagation of wrinkled turbulent flames in the context of hydrodynamic theory ». *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 680, p. 225-264.
- Davis, Scott G., Ameya V. Joshi, Hai Wang et Fokion Egolfopoulos. 2005. « An optimized kinetic model of H₂/CO combustion ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, n° 1, p. 1283-1292.

- Department of Mechanical and Structural Engineering and Material Science. 2010. *IGCC State-of-the-art report*. Coll. « EU-FP7 Low emission gas turbine technology for hydrogen-rich syngas ». Norway: University of Stavanger, 91 p.
- Di Benedetto, A., V. Di Sarli, E. Salzano, F. Cammarota et G. Russo. 2009. « Explosion behavior of CH₄/O₂/N₂/CO₂ and H₂/O₂/N₂/CO₂ mixtures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 16, p. 6970-6978.
- Dinkelacker, F., B. Manickam et S. P. R. Muppala. 2011. « Modelling and simulation of lean premixed turbulent methane/hydrogen/air flames with an effective Lewis number approach ». *Combustion and Flame*, vol. 158, n° 9, p. 1742-1749.
- Dong, Chen, Qulan Zhou, Qinxin Zhao, Yaqing Zhang, Tongmo Xu et Shien Hui. 2009. « Experimental study on the laminar flame speed of hydrogen/carbon monoxide/air mixtures ». *Fuel*, vol. 88, n° 10, p. 1858-1863.
- Famous Inventor. 2017. « John Barber ». < <http://www.famousinventors.org/john-barber> >. Consulté le 12 février 2017.
- Galmiche, B., F. Halter, F. Foucher et P. Dagaut. 2011. « Effects of Dilution on Laminar Burning Velocity of Premixed Methane/Air Flames ». *Energy & Fuels*, vol. 25, p. 948-954.
- Gasification Technologies Council. 2015. « Global Syngas Output by Feedstock ». < <http://www.gasification.org/what-is-gasification/how-does-it-work/the-gasification-process/> >. Consulté le 17 mai 2017.
- Giannakopoulos, George K., Athanasios Gatzoulis, Christos E. Frouzakis, Moshe Matalon et Ananias G. Tomboulides. 2015. « Consistent definitions of “Flame Displacement Speed” and “Markstein Length” for premixed flame propagation ». *Combustion and Flame*, vol. 162, n° 4, p. 1249-1264.
- Giles, Daniel E., Sibendu Som et Suresh K. Aggarwal. 2006. « NO_x emission characteristics of counterflow syngas diffusion flames with airstream dilution ». *Fuel*, vol. 85, n° 12-13, p. 1729-1742.
- Glassman, Irvin, et Richard A. Yetter. 2008. *Combustion*, 4th edition Ed.: Academic Press, 773 p.
- Goix, P. J., et I. G. Shepherd. 1993. « Lewis Number Effects on Turbulent Premixed Flame Structure ». *Combustion Science and Technology*, vol. 91, n° 4-6, p. 191-206.
- Gonzalez-Juez, Esteban D., Alan R. Kerstein, R. Ranjan et S. Menon. 2017. « Advances and challenges in modeling high-speed turbulent combustion in propulsion systems ». *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 60, p. 26-67.

- Göransson, Kristina, Ulf Söderlind, Jie He et Wennan Zhang. 2011. « Review of syngas production via biomass DFBGs ». *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 15, n° 1, p. 482-492.
- Gostintsev, Yu A., A. G. Istratov et Yu V. Shulenin. 1988. « Self-similar propagation of a free turbulent flame in mixed gas mixtures ». *Combustion, Explosion and Shock Waves*, vol. 24, n° 5, p. 563-569.
- Gu, Xiaolei, Zuohua Huang, Si Wu et Qianqian Li. 2010. « Laminar burning velocities and flame instabilities of butanol isomers–air mixtures ». *Combustion and Flame*, vol. 157, n° 12, p. 2318-2325.
- Halter, F., F. Foucher, L. Landry et C. Mounaïm-Rousselle. 2009. « Effect of Dilution by Nitrogen and/or Carbon Dioxide on Methane and Iso-Octane Air Flames ». *Combustion Science and Technology*, vol. 181, n° 6, p. 813-827.
- Hawkes, Evatt R., et Jacqueline H. Chen. 2004. « Direct numerical simulation of hydrogen-enriched lean premixed methane–air flames ». *Combustion and Flame*, vol. 138, n° 3, p. 242-258.
- Hossein Sahraei, M., David McCalden, Robin Hughes et L. A. Ricardez-Sandoval. 2014. « A survey on current advanced IGCC power plant technologies, sensors and control systems ». *Fuel*, vol. 137, p. 245-259.
- Hu, Erjiang, Zuohua Huang, Jiajia He, Chun Jin et Jianjun Zheng. 2009a. « Experimental and numerical study on laminar burning characteristics of premixed methane–hydrogen–air flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 11, p. 4876-4888.
- Hu, Erjiang, Zuohua Huang, Jiajia He et Haiyan Miao. 2009b. « Experimental and numerical study on laminar burning velocities and flame instabilities of hydrogen–air mixtures at elevated pressures and temperatures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 20, p. 8741-8755.
- Hu, Erjiang, Zuohua Huang, Jiajia He, Jianjun Zheng et Haiyan Miao. 2009c. « Measurements of laminar burning velocities and onset of cellular instabilities of methane–hydrogen–air flames at elevated pressures and temperatures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 13, p. 5574-5584.
- Huang, Zuohua, Yong Zhang, Ke Zeng, Bing Liu, Qian Wang et Deming Jiang. 2006. « Measurements of laminar burning velocities for natural gas–hydrogen–air mixtures ». *Combustion and Flame*, vol. 146, n° 1–2, p. 302-311.

- Inage, Shin-ichi, Hironobu Kobayashi et Nariyoshi Kobayashi. 1999. « A Theoretical Evaluation of Fractal Dimension of Turbulent Flame ». *JSME International Journal Series B*, vol. 42, n° 3, p. 344-348.
- International Energy Agency. 2017. « About Coal ». < <https://www.iea.org/topics/coal/> >. Consulté le 3 janvier 2017.
- Jansohn, Peter. 2013. *Modern gas turbine systems: high efficiency, low emission, fuel flexible power generation*, Books24x7 version Ed.: Woodhead Publishing, 849 p.
- Jomaas, G., C.K. Law et J.K. Bechtold. 2007. « On transition to cellularity in expanding spherical flames ». *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 583, p. 1-26.
- Jomaas, Grunde. 2008. « Propagation and stability of expanding spherical flames ». Thèse de doctorat. Princeton University, 245 p.
- Jones, Robert M., et Norman Z. Shilling. 2003. *IGCC Gas Turbines for Refinery Applications*. GE Power Systems (GER-4219).
- Kee, R.J., J.F. Grcar, M.D. Smooke et J.A. Miller. 1985. *A Fortran program for modeling steady laminar one-dimensional premixed flames. Report SAND85-8240*. Livermore, CA: Sandia National Laboratories
- Keppeler, Roman, et Michael Pfitzner. 2015. « Modelling of Landau–Darrieus and thermo-diffusive instability effects for CFD simulations of laminar and turbulent premixed combustion ». *Combustion Theory and Modelling*, vol. 19, n° 1, p. 1-28.
- Kishore, V. Ratna, M. R. Ravi et Anjan Ray. 2011. « Adiabatic burning velocity and cellular flame characteristics of H₂–CO–CO₂–air mixtures ». *Combustion and Flame*, vol. 158, n° 11, p. 2149-2164.
- Kobayashi, Hideaki, Yasuharu Kawabata et Kaoru Maruta. 1998. « Experimental study on general correlation of turbulent burning velocity at high pressure ». *Symposium (International) on Combustion*, vol. 27, n° 1, p. 941-948.
- Kwon, O. C., G. Rozenchan et C. K. Law. 2002. « Cellular instabilities and self-acceleration of outwardly propagating spherical flames ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 29, n° 2, p. 1775-1783.
- La Vision. 2016. *précision de la caméra* (Communication personnelle)
- Lafay, Y., B. Renou, G. Cabot et M. Boukhalfa. 2008. « Experimental and numerical investigation of the effect of H₂ enrichment on laminar methane–air flame thickness ». *Combustion and Flame*, vol. 153, n° 4, p. 540-561.

- Lapalme, Denis, Romain Lemaire et Patrice Seers. 2017. « Assessment of the method for calculating the Lewis number of H₂/CO/CH₄ mixtures and comparison with experimental results ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 42, n° 12, p. 8314-8328.
- Lapalme, Denis, et Patrice Seers. 2014. « Influence of CO₂, CH₄, and initial temperature on H₂/CO laminar flame speed ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, n° 7, p. 3477-3486.
- Law, C. K., G. Jomaas et J. K. Bechtold. 2005. « Cellular instabilities of expanding hydrogen/propane spherical flames at elevated pressures: theory and experiment ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, n° 1, p. 159-167.
- Law, C. K., et O. C. Kwon. 2004. « Effects of hydrocarbon substitution on atmospheric hydrogen-air flame propagation ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 29, n° 8, p. 867-879.
- Law, C. K., et C. J. Sung. 2000. « Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets ». *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 26, n° 4-6, p. 459-505.
- Law, Chung K. 2006. *Combustion Physics* Ed. New-York: Cambridge University Press, 722 p.
- Lee, H. C., L. Y. Jiang et A. A. Mohamad. 2014. « A review on the laminar flame speed and ignition delay time of Syngas mixtures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, n° 2, p. 1105-1121.
- Lefebvre, Arthur H., et Dilip R. Ballal. 2010. *Gas Turbine Combustion: Alternative Fuels and Emissions*, 3rd Ed. Boca Raton: CRC Press, 537 p.
- Li, Juan, Zhenwei Zhao, Andrei Kazakov, Marcos Chaos et Frederick L. Dryer. 2007. « A comprehensive kinetic mechanism for CO, CH₂O, and CH₃OH combustion ». *International Journal of Chemical Kinetics*, vol. 39, n° 3, p. 109-136.
- Lieuwen, Tim, Vigor Yang et Richard Yetter. 2010. *Synthesis Gas Combustion: Fundamentals and Applications* Ed.: CRC Press, 403 p.
- Lin, Yu-Chun, Peter Jansohn et Konstantinos Boulouchos. 2014. « Turbulent flame speed for hydrogen-rich fuel gases at gas turbine relevant conditions ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, n° 35, p. 20242-20254.
- Liu, Fushui, Xiuchao Bao, Jiayi Gu et Rui Chen. 2012. « Onset of cellular instabilities in spherically propagating hydrogen-air premixed laminar flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, n° 15, p. 11458-11465.

- Low-Tech Magazine. 2010. « Wood gas vehicles: firewood in the fuel tank ». < <http://www.lowtechmagazine.com/2010/01/wood-gas-cars.html#more> >. Consulté le 19 novembre 2015.
- Matalon, Moshe. 2009. « Flame dynamics ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, n° 1, p. 57-82.
- McLean, Ian C., David B. Smith et Simon C. Taylor. 1994. « The use of carbon monoxide/hydrogen burning velocities to examine the rate of the CO+OH reaction ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 25, n° 1, p. 749-757.
- Mechanical and Aerospace Engineering (Combustion Research). 2012. *Chemical-Kinetic Mechanisms for Combustion Applications*. (Version 2012-09-07). University of California at San Diego < <http://web.eng.ucsd.edu/mae/groups/combustion/mechanism.html> >.
- Molière, Michel. 2002. « Benefiting from the wide fuel capability of gas turbines:a review of application opportunities ». In *ASME Conference Proceedings*. (Amsterdam (Netherlands), June 3-6), p. 227-238.
- Monteiro, Eliseu, Marc Bellenoue, Julien Sotton, Nuno Afonso Moreira et Salvador Malheiro. 2010. « Laminar burning velocities and Markstein numbers of syngas-air mixtures ». *Fuel*, vol. 89, p. 1985-1991.
- Muppala, S. P. R., M. Nakahara, N. K. Aluri, H. Kido, J. X. Wen et M. V. Papalexandris. 2009. « Experimental and analytical investigation of the turbulent burning velocity of two-component fuel mixtures of hydrogen, methane and propane ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 22, p. 9258-9265.
- Natarajan, J., Y. Kochar, T. Lieuwen et J. Seitzman. 2009. « Pressure and preheat dependence of laminar flame speeds of H₂/CO/CO₂/O₂/He mixtures ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, p. 1261-1268.
- Natarajan, J., T. Lieuwen et J. Seitzman. 2007. « Laminar flame speeds of H₂/CO mixtures:Effect of CO₂ dilution, preheat temperature, and pressure ». *Combustion and Flame*, vol. 151, p. 104-119.
- Natarajan, J., S. Nandula, T. Lieuwen et J. Seitzman. 2005. « Laminar flame speeds of synthetic gas fuel mixtures ». In *ASME Turbo Expo 2005: Power for Land, Sea and Air*. (Reno-Tahoe (Nevada, USA), June 6-9).
- National Energy Technology Laboratory. « History of gasification ». < <http://www.netl.doe.gov/research/coal/energy-systems/gasification/gasifipedia/history-gasification> >. Consulté le 19 novembre 2015.

- National Energy Technology Laboratory. 2015a. *Cost and Performance Baselin for Fossil Energy Plants*. Volume 1a: Bituminous Coal (PC) and Natural Gas to Electricity.
- National Energy Technology Laboratory. 2015b. *Cost and Performance Baselin for Fossil Energy Plants*. Volume 1b: Bituminous Coal (IGCC) to Electricity.
- Okafor, Ekenechukwu C., Akihiro Hayakawa, Yukihide Nagano et Toshiaki Kitagawa. 2014. « Effects of hydrogen concentration on premixed laminar flames of hydrogen–methane–air ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, n° 5, p. 2409-2417.
- Okafor, Ekenechukwu C., Yukihide Nagano et Toshiaki Kitagawa. 2016. « Experimental and theoretical analysis of cellular instability in lean H₂-CH₄-air flames at elevated pressures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, n° 15, p. 6581-6592.
- Ordorica-Garcia, Guillermo, Peter Douglas, Eric Croiset et Ligang Zheng. 2006. « Technoeconomic evaluation of IGCC power plants for CO₂ avoidance ». *Energy Conversion and Management*, vol. 47, n° 15–16, p. 2250-2259.
- Prathap, C., Anjan Ray et M.R. Ravi. 2008. « Investigation of nitrogen dilution effects on the laminar burning velocity and flame stability of syngas fuel at atmospheric condition ». *Combustion and Flame*, vol. 155, n° 1-2, p. 145-160.
- Prathap, C., Anjan Ray et M. R. Ravi. 2012. « Effects of dilution with carbon dioxide on the laminar burning velocity and flame stability of H₂–CO mixtures at atmospheric condition ». *Combustion and Flame*, vol. 159, n° 2, p. 482-492.
- Qiao, L., C. H. Kim et G. M. Faeth. 2005. « Suppression effects of diluents on laminar premixed hydrogen/oxygen/nitrogen flames ». *Combustion and flame*, vol. 143, n° 1–2, p. 79-96.
- R. J. Kee, F. M. Rupley, J. A. Miller, M. E. Coltrin, J. F. Grcar, E. Meeks, H. K. Moffat, A. E. Lutz, G. Dixon Lewis, M. D. Smooke, J. Warnatz, G. H. Evans, R. S. Larson, R. E. Mitchell, L. R. Petzold, W. C. Reynolds, M. Caracotsios, W. E. Stewart, P. Glarborg, C. Wang et O. Adigun. 2000. *EQUIL: A program for computing chemical equilibria*. San Diego: Rection Design Inc.
- Ranga Dinesh, K. K. J., H. Shalaby, K. H. Luo, J. A. van Oijen et D. Thévenin. 2016. « High hydrogen content syngas fuel burning in lean premixed spherical flames at elevated pressures: Effects of preferential diffusion ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, n° 40, p. 18231-18249.

- Ratzke, Ansgar, Tobias Schöffler, Kalyan Kuppa et Friedrich Dinkelacker. 2015. « Validation of turbulent flame speed models for methane–air-mixtures at high pressure gas engine conditions ». *Combustion and Flame*, vol. 162, n° 7, p. 2778-2787.
- Reaction Design. 2005. *Chemkin Theory Manual*. (Version Release 4.0.2). San Diego
- Reaction Design. 2010. *Chemkin-Pro 15101*. San Diego
- Regele, Jonathan D., Edward Knudsen, Heinz Pitsch et Guillaume Blanquart. 2013. « A two-equation model for non-unity Lewis number differential diffusion in lean premixed laminar flames ». *Combustion and Flame*, vol. 160, n° 2, p. 240-250.
- Richards, Geo A., et Kent H. Castleton. 2010. « Gasification Technology to Produce Synthesis Gas ». In *Synthesis Gas Combustion: Fundamentals and Applications*, sous la dir. de Lieuwen, Tim, Vigor Yang et Richard Yetter, CRC Press: Taylor and Francis Group. p. 405. Boca Raton.
- Richards, Geo A., Kent H. Castleton et Nathan T. Weiland. 2010. « Syngas Utilization ». In *Synthesis Gas Combustion: Fundamentals and Applications*, sous la dir. de Lieuwen, Tim, Vigor Yang et Richard Yetter, CRC Press: Taylor and Francis Group. p. 405. Boca Raton.
- Sarli, V. Di, et A. Di Benedetto. 2007. « Laminar burning velocity of hydrogen-methane/air premixed flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 32, p. 637-646.
- Savard, Bruno, et Guillaume Blanquart. 2014. « An a priori model for the effective species Lewis numbers in premixed turbulent flames ». *Combustion and Flame*, vol. 161, n° 6, p. 1547-1557.
- Singh, Deepti, Takayuki Nishiie, Saad Tanvir et Li Qiao. 2012. « An experimental and kinetic study of syngas/air combustion at elevated temperatures and the effect of water addition ». *Fuel*, vol. 94, n° 0, p. 448-456.
- Smith, Gregory P., David M. Golden, Michael Frenklach, Nigel W. Moriarty, Boris Eiteneer, Mikhail Goldenberg, C. Thomas Bowman, Ronald K. Hanson, Soonho Song, William C. Gardiner Jr., Vitali V. Lissianski et Zhiwei Qin. *GRI Mech 3.0* <http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/>. Consulté le 8 juin 2011.
- Solar Energy Research Institute. 1979. *Gas Generator: the Swedish experience from 1939-1945*, Translated from the Swedish Academy of Engineering (1950), 3rd Ed. Colorado, USA: U.S. Department of Energy (contract No. EG-77-C-01-4042), 334 p.

- Song, Won Sik, Seong Wook Jung, Jeong Park, Oh Boong Kwon, Young Ju Kim, Tae Hyung Kim, Jin Han Yun et Sang In Keel. 2013. « Effects of syngas addition on flame propagation and stability in outwardly propagating spherical dimethyl ether-air premixed flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, n° 32, p. 14102-14114.
- StatPoint Technologies Inc. 2010. *Statgraphics Centurion XVI.I*. Warrenton, VA, USA < www.statgraphics.com/statgraphics_centurion.htm >.
- Sun, C. J., C. J. Sung, L. He et C. K. Law. 1999a. « Dynamics of weakly stretched flames: quantitative description and extraction of global flame parameters ». *Combustion and Flame*, vol. 118, n° 1-2, p. 108-128.
- Sun, C.J., C.J. Sung, L. He et C.K. Law. 1999b. « Dynamics of Weakly Stretched Flames: Quantitative Description and Extraction of Global Flame Parameters ». *Combustion and Flame*, vol. 118, p. 108-128.
- Sun, Hongyan, S.I. Yang, G. Jomaas et C.K. Law. 2007. « High-pressure laminar flame speeds and kinetic modeling of carbon monoxide/hydrogen combustion ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, p. 439-446.
- Sun, Yang, Rundong Li, Tianhua Yang, Xingping Kai et Yeguang He. 2013. « Gasification of biomass to hydrogen-rich gas in fluidized beds using porous medium as bed material ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, n° 33, p. 14208-14213.
- Sun, Zuo-Yu, Fu-Shui Liu, Xiu-Chao Bao et Xing-Hua Liu. 2012. « Research on cellular instabilities in outwardly propagating spherical hydrogen-air flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, n° 9, p. 7889-7899.
- Tahtouh, Toni, Fabien Halter et Christine Mounaïm-Rousselle. 2009. « Measurement of laminar burning speeds and Markstein lengths using a novel methodology ». *Combustion and Flame*, vol. 156, n° 9, p. 1735-1743.
- Tang, C. L., Z. H. Huang et C. K. Law. 2011. « Determination, correlation, and mechanistic interpretation of effects of hydrogen addition on laminar flame speeds of hydrocarbon-air mixtures ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 33, n° 1, p. 921-928.
- Tang, Chenglong, Zuohua Huang, Jinhua Wang et Jianjun Zheng. 2009. « Effects of hydrogen addition on cellular instabilities of the spherically expanding propane flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 5, p. 2483-2487.

- Togbé, C., P. Dagaut, F. Halter et F. Foucher. 2011. « 2-Propanol Oxidation in a Pressurized Jet-Stirred Reactor (JSR) and Combustion Bomb: Experimental and Detailed Kinetic Modeling Study ». *Energy & Fuels*, vol. 25, n° 2, p. 676-683.
- Turns, Stephen R. 2011. *an Introduction to Combustion: concepts and applications*, 3rd Ed.: McGraw-Hill, 732 p.
- U.S. Energy Information Administration. 2016. *International Energy Outlook 2016*. < <http://www.eia.gov/outlooks/ieo/> >.
- Vu, Tran Manh, Jeong Park, Jeong Soo Kim, Oh Boong Kwon, Jin Han Yun et Sang In Keel. 2011a. « Experimental study on cellular instabilities in hydrocarbon/hydrogen/carbon monoxide–air premixed flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, p. 6914-6924.
- Vu, Tran Manh, Jeong Park, Oh Boong Kwon, Dae Seok Bae, Jin Han Yun et Sang In Keel. 2010. « Effects of diluents on cellular instabilities in outwardly propagating spherical syngas–air premixed flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 35, n° 8, p. 3868-3880.
- Vu, Tran Manh, Jeong Park, Oh Boong Kwon et Jeong Soo Kim. 2009. « Effects of hydrocarbon addition on cellular instabilities in expanding syngas–air spherical premixed flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, n° 16, p. 6961-6969.
- Vu, Tran Manh, Won Sik Song, Jeong Park, Dae Seok Bae et Hyun Seok You. 2011b. « Measurements of propagation speeds and flame instabilities in biomass derived gas–air premixed flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, n° 18, p. 12058-12067.
- Wang, Hai, Xiaoqing You, Ameya V. Joshi, Scott G. Davis, Alexander Laskin, Fokion Egolfopoulos et Chung K. Law. Mai 2007. *USC Mech Version II. High-Temperature Combustion Reaction Model of H₂/CO/C₁-C₄ Compounds*. < http://ignis.usc.edu/USC_Mech_II.htm >.
- Wang, Z. H., W. B. Weng, Y. He, Z. S. Li et K. F. Cen. 2015. « Effect of H₂/CO ratio and N₂/CO₂ dilution rate on laminar burning velocity of syngas investigated by direct measurement and simulation ». *Fuel*, vol. 141, p. 285-292.
- Weng, W. B., Z. H. Wang, Y. He, R. Whiddon, Y. J. Zhou, Z. S. Li et K. F. Cen. 2015. « Effect of N₂/CO₂ dilution on laminar burning velocity of H₂–CO–O₂ oxy-fuel premixed flame ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 40, n° 2, p. 1203-1211.

- Whitty, Kevin J., Hongzhi R. Zhang et Eric G. Eddings. 2010. « Pollutant formation and control ». In *Synthesis Gas Combustion: Fundamentals and Applications*, sous la dir. de Lieuwen, Tim, Vigor Yang et Richard Yetter, CRC Press: Taylor and Francis Group. p. 405. Boca Raton.
- Williams, Forman A. 1985. *Combustion Theory* Ed. États-Unis d'Amérique: The Benjamin/Cummings Publishing Company, Inc, 680 p.
- Xie, Yongliang, Jinhua Wang, Xiao Cai et Zuohua Huang. 2016. « Self-acceleration of cellular flames and laminar flame speed of syngas/air mixtures at elevated pressures ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, n° 40, p. 18250-18258.
- Yang, Sheng, Abhishek Saha, Fujia Wu et Chung K. Law. 2016. « Morphology and self-acceleration of expanding laminar flames with flame-front cellular instabilities ». *Combustion and Flame*, vol. 171, p. 112-118.
- Yaw, Carl L. 2012, 2013, 2014. *Yaws' Critical Property Data for Chemical Engineers and Chemists*. Knovel. <http://app.knovel.com/hotlink/toc/id:kpYCPDCECD/yaws-critical-property/yaws-critical-property>