

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

THÈSE PRÉSENTÉE À
L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

COMME EXIGENCE PARTIELLE
À L'OBTENTION DU
DOCTORAT EN GÉNIE

Ph. D.

PAR
Pascale OUIMETTE

CARACTÉRISATION EXPÉRIMENTALE ET NUMÉRIQUE DE LA FLAMME DE
CARBURANTS SYNTHÉTIQUES GAZEUX

MONTREAL, LE 18 JANVIER 2012



, Pascale Ouimette, 2012



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. Robert Hausler, président du jury
Département de génie de la construction à l'École de technologie supérieure

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

M. Gilles Bourque, chef d'équipe Combustion Recherche et Technologies
Rolls-Royce Canada Ltée

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

LE 19 DÉCEMBRE 2011

À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je désire remercier mon directeur de thèse, M. Patrice Seers, pour son soutien moral tout au long de mes études de cycles supérieurs. Sans ses encouragements continus lors des moments difficiles de même que lors des périodes plus prometteuses, le déroulement de mon doctorat n'aurait pas été le même. Merci.

Je souhaite également remercier les organismes suivants pour leur aide financière : le Conseil de recherches en sciences naturelles et en génie du Canada, le Fonds de recherche du Québec – Nature et Technologies ainsi que l'École de technologie supérieure. Leur soutien permet aux étudiants de se concentrer pleinement sur leur projet de recherche, ce qui est grandement apprécié.

Finalement, je remercie ma mère Danièle qui m'a continuellement encouragée à foncer dans la vie et à poursuivre mes rêves. Elle a su me soutenir lors des périodes difficiles et m'a toujours démontré sa fierté de me voir avancer dans mes projets. Mes derniers remerciements vont à mon mari Robert qui a parfois eu à me pousser pour que je continue d'avancer.

CARACTÉRISATION EXPÉRIMENTALE ET NUMÉRIQUE DE LA FLAMME DE CARBURANTS SYNTHÉTIQUES GAZEUX

Pascale OUIMETTE

RÉSUMÉ

Ce projet de recherche vise à caractériser expérimentalement et numériquement la flamme laminaire de carburants synthétiques gazeux composés d'hydrogène (H_2), de monoxyde de carbone (CO) et de dioxyde de carbone (CO_2). Les objectifs secondaires consistent plus précisément à : 1) comprendre l'influence de l'addition de CO_2 dans le carburant et du ratio H_2/CO sur les émissions polluantes de NO_x , la température de flamme, la hauteur de flamme et l'apparence de la flamme; 2) analyser l'influence du ratio H_2/CO sur la structure chimique de la flamme et; 3) produire un modèle numérique en 2-D de la flamme laminaire afin de comparer différentes cinétiques chimiques de combustion. La structure de la thèse comporte donc trois chapitres correspondant à chacun des sous-objectifs. Pour la première partie, les manipulations expérimentales ont permis de conclure que l'addition de CO_2 diminue la température de flamme de même que les $EINO_x$ pour toute la plage de richesses tandis que l'augmentation du ratio H_2/CO a peu d'influence sur la température de flamme, mais entraîne une réduction des $EINO_x$ pour une richesse inférieure à 2. La température de flamme constante observée avec l'addition de CO, dont la température de flamme adiabatique est plus élevée, est principalement due à une augmentation des pertes de chaleur par radiation. Comme les NO_x des flammes d' $H_2/CO/CO_2$ dépendent principalement de la température de flamme, le reste de la thèse est concentré sur la mesure des espèces chimiques majeures dans la flamme puisqu'une bonne prédiction des espèces et du dégagement de chaleur permettra de mieux prédire les NO_x . Donc, pour la deuxième partie, les espèces chimiques majeures sont mesurées pour différents ratios H_2/CO à l'aide de la spectroscopie Raman. Les résultats démontrent que la valeur maximale d' H_2O mesurée diminue avec l'ajout de CO tandis que la concentration centrale de CO_2 augmente, tel qu'attendu. Toutefois, à une hauteur correspondant à 20% de la hauteur visible de la flamme et pour tous les carburants étudiés, la concentration de CO_2 mesurée est inférieure à sa valeur stoechiométrique tandis que l' H_2O mesuré a déjà atteint sa valeur stoechiométrique. La lenteur des réactions chimiques produisant le CO_2 comparativement à celles formant l' H_2O pourrait expliquer cette différence. Pour la troisième partie, un modèle numérique a été réalisé pour une flamme laminaire 50% H_2 / 50% CO partiellement prémélangée. Ce modèle compare différents mécanismes de combustion et démontre qu'un mécanisme réduit diminue le temps de calcul tout en conservant la qualité des prédictions d'un mécanisme complexe. Ce modèle, incluant les pertes de chaleur par radiation, a également été validé sur toute la plage de carburants étudiés, soit de 100% H_2 à 5% H_2 / 95% CO. La plus importante recommandation de cette thèse est d'inclure un mécanisme de chimie pour les émissions polluantes de NO_x au modèle numérique afin de possiblement déterminer un carburant optimal. De plus, il serait nécessaire de valider le modèle numérique en réponse à la variation de différents paramètres tels que la richesse, la température initiale et la pression initiale du mélange.

Mots clés : carburants synthétiques gazeux, NO_x , structure de flamme, simulation numérique

CARACTÉRISATION EXPÉRIMENTALE ET NUMÉRIQUE DE LA FLAMME DE CARBURANTS SYNTHÉTIQUES GAZEUX

Pascale OUIMETTE

ABSTRACT

The goal of this research is to characterize experimentally and numerically laminar flames of syngas fuels made of hydrogen (H_2), carbon monoxide (CO), and carbon dioxide (CO_2). More specifically, the secondary objectives are: 1) to understand the effects of CO_2 concentration and H_2/CO ratio on NO_x emissions, flame temperature, visible flame height, and flame appearance; 2) to analyze the influence of H_2/CO ratio on the flame structure, and; 3) to compare and validate different H_2/CO kinetic mechanisms used in a CFD (computational fluid dynamics) model over different H_2/CO ratios. Thus, the present thesis is divided in three chapters, each one corresponding to a secondary objective. For the first part, experimentations enabled to conclude that adding CO_2 diminishes flame temperature and $EINO_x$ for all equivalence ratios while increasing the H_2/CO ratio has no influence on flame temperature but increases $EINO_x$ for equivalence ratios lower than 2. Concerning flame appearance, a low CO_2 concentration in the fuel or a high H_2/CO ratio gives the flame an orange color, which is explained by a high level of CO in the combustion by-products. The observed constant flame temperature with the addition of CO, which has a higher adiabatic flame temperature, is mainly due to the increased heat loss through radiation by CO_2 . Because NO_x emissions of $H_2/CO/CO_2$ flames are mainly a function of flame temperature, which is a function of the H_2/CO ratio, the rest of the thesis concentrates on measuring and predicting species in the flame as a good prediction of species and heat release will enable to predict NO_x emissions. Thus, for the second part, different H_2/CO fuels are tested and major species are measured by Raman spectroscopy. Concerning major species, the maximal measured H_2O concentration decreases with addition of CO to the fuel, while the central CO_2 concentration increases, as expected. However, at 20% of the visible flame height and for all fuels tested herein, the measured CO_2 concentration is lower than its stoichiometric value while the measured H_2O already reached its stoichiometric concentration. The slow chemical reactions necessary to produce CO_2 compared to the ones forming H_2O could explain this difference. For the third part, a numerical model is created for a partially premixed flame of 50% H_2 / 50% CO. This model compares different combustion mechanisms and shows that a reduced kinetic mechanism reduces simulation times while conserving the results quality of more complex kinetic schemes. This numerical model, which includes radiation heat losses, is also validated for a large range of fuels going from 100% H_2 to 5% H_2 / 95% CO. The most important recommendation of this work is to include a NO_x mechanism to the numerical model in order to eventually determine an optimal fuel. It would also be necessary to validate the model over a wide range for different parameters such as equivalence ratio, initial temperature and initial pressure.

Keywords : syngas fuels, NO_x , flame structure, numerical simulation

TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 ÉMISSIONS POLLUANTES, TEMPÉRATURE DE FLAMME, APPARENCE DE FLAMME ET HAUTEUR DE FLAMME.....	3
1.1 Introduction.....	3
1.2 Revue de la littérature	3
1.2.1 Hydrocarbures.....	4
1.2.2 Influence de l'addition de CO ₂	5
1.2.3 Effet du rapport H ₂ /CO	6
1.2.4 Conclusion	7
1.3 Méthodologie expérimentale	8
1.3.1 Détermination des carburants	9
1.3.2 Description du brûleur	11
1.3.3 Émissions polluantes.....	12
1.3.4 Températures de flamme.....	14
1.3.5 Hauteur visible de flamme	15
1.3.6 Conditions d'opération.....	15
1.3.7 Incertitude des mesures expérimentales.....	16
1.3.7.1 Incertitude globale d'une mesure simple	16
1.3.7.2 Incertitude des résultats expérimentaux.....	18
1.4 Résultats expérimentaux et discussion.....	19
1.4.1 Émissions polluantes.....	20
1.4.2 Températures de flamme.....	24
1.4.3 Apparence de la flamme	26
1.4.4 Hauteur visible de flamme	30
1.4.5 Discussion des résultats	32
1.5 Conclusion	34
CHAPITRE 2 SPECTROSCOPIE	37
2.1 Introduction.....	37
2.2 Revue de la littérature	38
2.2.1 Flammes d'hydrocarbures.....	38
2.2.2 Flammes d'hydrogène.....	43
2.2.3 Flammes de monoxyde de carbone.....	45
2.2.4 Flammes de mélanges H ₂ /CO	46
2.2.5 Conclusion	46
2.3 Méthodologie expérimentale	47
2.3.1 Détermination des carburants	47
2.3.2 Montage expérimental (espèces chimiques)	48
2.3.2.1 Détermination des angles de polarisation	51
2.3.2.2 Analyse de sensibilité	53

2.3.3	Montage expérimental (température).....	56
2.3.4	Conditions d'opération.....	58
2.3.5	Analyse d'incertitude.....	58
2.4	Résultats expérimentaux et discussion.....	60
2.4.1	Comparaison entre une flamme d'H ₂ de diffusion et partiellement prémélangée.....	60
2.4.2	Influence du niveau de prémélange sur la structure de flamme.....	64
2.4.3	Influence du ratio H ₂ /CO sur la structure de flamme.....	66
2.5	Conclusion.....	71
CHAPITRE 3 SIMULATIONS NUMÉRIQUES.....		73
3.1	Introduction.....	73
3.2	Revue de la littérature.....	73
3.2.1	Mécanismes H ₂ /CO.....	74
3.2.2	Modélisation numérique.....	81
3.2.3	Conclusion.....	83
3.3	Méthodologie expérimentale.....	84
3.4	Modèle numérique.....	86
3.4.1	Équations.....	86
3.4.2	Géométrie et conditions aux frontières.....	89
3.4.3	Maillage.....	90
3.4.4	Procédure de solution.....	92
3.4.5	Validation du modèle.....	93
3.4.5.1	Méthode GCI.....	93
3.4.5.2	Validation à froid.....	96
3.4.5.3	Validation à chaud.....	97
3.5	Résultats et discussion.....	101
3.5.1	Influence des mécanismes de chimie.....	101
3.5.2	Effet de la radiation.....	107
3.5.3	Effet du ratio H ₂ /CO.....	112
3.6	Applicabilité du modèle.....	120
3.7	Conclusion.....	122
CONCLUSION.....		125
RECOMMANDATIONS.....		127
ANNEXE I	NO _x EMISSION CHARACTERISTICS OF PARTIALLY PREMIXED LAMINAR FLAMES OF H ₂ /CO/CO ₂ MIXTURES.....	129
ANNEXE II	CALCUL DE L'INCERTITUDE POUR LE CHAPITRE 1.....	131
ANNEXE III	CALCUL DE L'INCERTITUDE POUR LE CHAPITRE 2.....	139
ANNEXE IV	INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES AU CHAPITRE 2.....	143

ANNEXE V	MÉCANISMES DE CHIMIE	145
ANNEXE VI	INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES AU CHAPITRE 3	153
LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....		163

LISTE DES TABLEAUX

	Page
Tableau 1.1	Composition de différents carburants synthétiques.....10
Tableau 1.2	Carburants de l'étude.....10
Tableau 1.3	Conditions d'opération16
Tableau 1.4	Incertitude totale des différentes mesures pour le carburant 117
Tableau 1.5	Incertitude globale des valeurs calculées.....19
Tableau 1.6	Ratios moyennés $EINO_x/EINO$ et $EINO_2/EINO$21
Tableau 1.7	Ratios moyennés $EINO_x/EINO$ et $EINO_2/EINO$23
Tableau 2.1	Carburants de l'étude.....48
Tableau 2.2	Hauteurs visibles moyennes des flammes à l'étude50
Tableau 2.3	Sections transversales relatives des espèces à 300 K57
Tableau 2.4	Conditions d'opération58
Tableau 2.5	Résumé des incertitudes systématiques des appareils de mesure.....59
Tableau 2.6	Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de richesse et de hauteur de flamme59
Tableau 3.1	Résumé des réactions présentes dans divers mécanismes H_2/CO77
Tableau 3.2	Résumé des paramètres validés avec divers mécanismes H_2/CO80
Tableau 3.3	Mécanismes de chimie étudiés88
Tableau 3.4	Valeurs des variables caractéristiques des trois maillages96
Tableau 3.5	Valeurs associées à la méthode GCI.....100
Tableau 3.6	Temps processeur nécessaire pour 36 000 itérations avec le maillage de 98 841 nœuds sur un processeur à 3,20 GHz.....107

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1	Montage expérimental pour les mesures des émissions polluantes.....13
Figure 1.2	Influence de la quantité de CO ₂ sur EINO _x21
Figure 1.3	Influence du rapport H ₂ /CO sur EINO _x22
Figure 1.4	Influence de la quantité de CO ₂ sur la température de flamme25
Figure 1.5	Influence du rapport H ₂ /CO sur la température de flamme.....26
Figure 1.6	Images de flammes partiellement prémélangées pour un nombre de Reynolds constant de 1 400 (Carburant : 45% H ₂ /35% CO/20% CO ₂)27
Figure 1.7	Influence de l'addition de CO ₂ sur la flamme de diffusion.....29
Figure 1.8	Influence du rapport H ₂ /CO sur la flamme de diffusion30
Figure 1.9	Influence de l'addition de CO ₂ sur la hauteur de flamme31
Figure 1.10	Influence du rapport H ₂ /CO sur la hauteur de flamme.....32
Figure 2.1	Flamme de diffusion (gauche) et structure de flamme double (droite)41
Figure 2.2	Profils radiaux de la température de flamme et des espèces chimiques mesurées à une hauteur de 5 mm pour une flamme de diffusion d'hydrogène (Re = 330). Les symboles représentent les résultats expérimentaux et les lignes représentent les résultats obtenus numériquement Tirée de Cheng <i>et al.</i> (2006, p.275).....45
Figure 2.3	Montage expérimental du système laser.....49
Figure 2.4	Caractéristique dipôle de la diffusion Raman de la lumière.....52
Figure 2.5	Polarisation du faisceau laser52
Figure 2.6	Variation de l'intensité du signal en fonction du degré de polarisation53
Figure 2.7	Variation des espèces mesurées (□ = N ₂ , Δ = O ₂ , ○ = CO, ◇ = H ₂ , ▽ = CO ₂) selon le nombre d'images d'acquisition : a) sans flamme et b) avec flamme54
Figure 2.8	Variation des espèces mesurées (□ = N ₂ , Δ = O ₂ , ○ = CO, ◇ = H ₂ , ▽ = CO ₂) selon l'axe radial pour une résolution de : a) 0,45 mm et b) 1 mm.....56

Figure 2.9	Profils radiaux des concentrations volumiques des espèces chimiques majeures et de la température pour une flamme d'H ₂ pur avec $\phi = \infty$ (gauche) et $\phi = 3$ (droite) ($\square = \text{N}_2$, $\Delta = \text{O}_2$, $\circ = \text{H}_2\text{O}$, $\diamond = \text{H}_2$, $\nabla = \text{T}$).....	63
Figure 2.10	Profils radiaux des concentrations des espèces chimiques majeures et de la température pour une flamme d'H ₂ pur à $z/H_T = 20\%$	65
Figure 2.11	Profils radiaux des concentrations des espèces chimiques majeures et de la température pour des flammes d'H ₂ /CO à $z/H_T = 20\%$	68
Figure 2.12	Variation de α avec la hauteur en fonction du ratio H ₂ /CO.....	70
Figure 2.13	Profil numérique de CO ₂ à $\phi = 3$ pour tous les carburants	71
Figure 3.1	Montage expérimental servant à mesurer la concentration d'OH par chimioluminescence	85
Figure 3.2	Domaine utilisé lors de la simulation	90
Figure 3.3	Domaine utilisé lors de la simulation	91
Figure 3.4	Comparaison de la vitesse expérimentale et numérique pour différentes hauteurs	97
Figure 3.5	Comparaison entre les résultats expérimentaux ($\square = \text{N}_2$, $\Delta = \text{O}_2$, $\circ = \text{H}_2\text{O}$, $\diamond = \text{H}_2$, $\nabla = \text{CO}$, $* = \text{CO}_2$) et ceux numériques (lignes) à différentes hauteurs de flamme.....	98
Figure 3.6	Variation radiale de la température de flamme à différentes hauteurs; les symboles représentent les résultats expérimentaux et les lignes représentent les résultats numériques de Davis <i>et al.</i> (2005)	99
Figure 3.7	Comparaison des profils radiaux numériques à $z/H_T = 10\%$ (noir : Davis <i>et al.</i> (2005), bleu : Saxena et Williams (2006), rouge : Sun <i>et al.</i> (2007), vert : Boivin <i>et al.</i> (2011)) pour les espèces chimiques majeures et la température de flamme	102
Figure 3.8	Comparaison des profils radiaux numériques à $z/H_T = 20\%$ (noir : Davis <i>et al.</i> (2005), bleu : Saxena et Williams (2006), rouge : Sun <i>et al.</i> (2007), vert : Boivin <i>et al.</i> (2011)) pour les espèces chimiques majeures et la température de flamme	104
Figure 3.9	Effet de la chimie cinétique sur la prédiction des espèces H ₂ O et CO ₂	106
Figure 3.10	Comparaison des profils radiaux numériques (lignes) et expérimentaux (symboles) à $z/H_T = 60\%$	108

Figure 3.11	Effet de la radiation sur la prédiction de la température de flamme.....	110
Figure 3.12	Effet de la radiation sur la prédiction de H ₂ O et CO ₂	111
Figure 3.13	Comparaison des prédictions numériques de OH avec et sans radiation	112
Figure 3.14	Comparaison entre les profils radiaux expérimentaux (symboles) et numériques (lignes) pour des flammes d'H ₂ /CO à $z/H_T = 20\%$	113
Figure 3.15	Influence du ratio H ₂ /CO sur les isocontours numériques de la température de flamme	114
Figure 3.16	Variation de la concentration massique d'H ₂ (gauche) et de CO (droite) par rapport à sa concentration initiale respective selon l'axe central	115
Figure 3.17	Influence du ratio H ₂ /CO sur les isocontours numériques de l'H ₂ O	117
Figure 3.18	Influence du ratio H ₂ /CO sur les isocontours numériques du CO ₂	117
Figure 3.19	Variation axiale de la concentration massique d'H ₂ O, de CO ₂ et d'OH	118
Figure 3.20	Influence du ratio H ₂ /CO sur les isocontours numériques du N ₂	119
Figure 3.21	Influence du ratio H ₂ /CO sur les isocontours numériques de l'O ₂	120

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

2-D	Deux dimensions
3-D	Trois dimensions
CARS	Spectroscopie de diffusion Raman anti-Stokes cohérente
CPG	Chromatographie en phase gazeuse
CPU	Temps de processeur utilisé
GCI	Méthode de convergence du maillage
HCLD	Détecteur à chimioluminescence chauffé
Nd:YAG	Grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme
Nd:YLF	Fluorure d'yttrium-lithium dopé au néodyme
NDIR	Analyseur à infrarouge non dispersif
UCI	<i>University of California - Irvine</i>
UTRC	<i>United Technologies Research Center</i>
UV	Ultra-violet

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

Espèces chimiques

Ar	Argon
C	Atome de carbone
C ₂ H ₂	Acétylène
CH	Radical méthylidine
CH ₂	Radical méthylène
CH ₂ O	Formaldéhyde
CH ₄	Méthane
CN	Cyanure
CO	Monoxyde de carbone
CO ₂	Dioxyde de carbone
H	Atome d'hydrogène
H ₂	Hydrogène
H ₂ O	Eau
HCN	Cyanure d'hydrogène
HCO	Radical formyle
HNO	Radical nitroxyle
HO ₂	Radical hydroperoxyde
M	Tiers corps
N	Atome d'azote
N ₂	Azote
N ₂ O	Oxyde de diazote
NCN	Radical cyanonitrène
NCO	Molécule isocyanate
NH	Molécule d'ammoniac
NO	Oxyde d'azote
NO ₂	Dioxyde d'azote
NO _x	Oxydes d'azote
O	Atome d'oxygène
O ₂	Oxygène
OH	Radical hydroxyle

Unités de mesure

g	gramme (unité de masse)
kg	kilogramme (unité de masse)
J	joule (unité d'énergie)
kJ	kilojoule (unité d'énergie)
µm	micromètre (unité de longueur)
mm	millimètre (unité de longueur)
cm	centimètre (unité de longueur)
m	mètre (unité de longueur)

nm	nanomètre (unité de longueur)
Hz	hertz (unité de fréquence)
GHz	gigahertz (unité de fréquence)
°C	degré Celsius (unité calorifique)
K	kelvin (unité calorifique)
m/s	mètre par seconde (unité de vitesse)
N	newton (unité de force)
atm	atmosphère (unité de pression)
Pa	pascal (unité de pression)
ppm	partie par million (unité de concentration)
L/min	litre par minute (unité de débit)
W	watt (unité de puissance)

Symboles

Lettres grecques :

α	Ratio entre la concentration de CO ₂ mesurée et la valeur stoechiométrique
ε	Erreur relative
ε_T	Émissivité du thermocouple
λ	Coefficient de conductivité thermique (W/m-K)
ρ	Densité (kg/m ³)
φ	Richesse
φ_B	Richesse du mélange air/carburant du tube interne
σ	Écart-type mesuré lors de la prise de données
σ_i	Section transversale relative des espèces dans l'air ambiant
σ_j	Section transversale relative des espèces dans la flamme
σ_N	Section transversale relative normalisée
σ_{SB}	Constante de Stefan-Boltzmann (5,67 x 10 ⁻⁸ W/m ² -K ⁴)
τ_{ij}	Tenseur de viscosité (Pa)
μ	Viscosité dynamique (kg/m-s)
$\dot{\omega}_k$	Taux de réaction de l'espèce k (cm ³ /mole-s)
$\dot{\omega}_T$	Terme source de dégagement de chaleur dû à la combustion
χ	Variable donnée

Lettres latines :

$a_{p,k}$	Coefficient d'absorption moyen de Planck de l'espèce k (J-s)
A_i	Aire de la i ème cellule
B_i	Incertitude systématique individuelle
B_{χ_i}	Incertitude systématique de la variable χ
d	Diamètre du thermocouple (m)
D_k	Coefficient de diffusivité thermique de l'espèce k (m ² /s)
EINO	Indice d'émissions de l'oxyde d'azote (g/kg de carburant)
EINO ₂	Indice d'émissions du dioxyde d'azote (g/kg de carburant)

$EINO_x$	Indice d'émissions des oxydes d'azote (g/kg de carburant)
f	Focale de la lentille (m)
f_1	Fonction de la variable y
$f_{k,i}$	Forces volumiques agissant sur l'espèce k (N/kg)
g	Constante de la gravité (9,81 m/s ²)
GCI_{fin}	Index de convergence du maillage fin
h	Grandeur de maille typique (m)
h_f°	Enthalpie de formation (J)
h_s	Enthalpie totale (J)
H_T	Hauteur visible de la flamme (cm)
$I(r,z)$	Intensité du signal Rayleigh en un point donné
MM_k	Masse molaire de l'espèce k (kg)
N	Nombre total de cellules
N_T	Nombre de mesures effectuées
p	Ordre apparent
p_k	Pression partielle de l'espèce k (atm)
P	Pression (Pa)
PCI	Pouvoir calorifique inférieur (kJ/kg de carburant)
\dot{Q}	Terme source de chaleur (J/m ² -s)
r	Axe radial de la flamme
r_{21}, r_{32}	Facteur de raffinement
Re	Nombre de Reynolds
$S_{\bar{\chi}_i}$	Incertitude aléatoire
T	Température locale de la flamme (K)
$T(r,z)$	Température en un point donné (K)
T_b	Température de l'air ambiant (K)
$T_{corrigée}$	Température de flamme corrigée (K)
T_{mur}	Température du mur (K)
$T_{thermocouple}$	Température du thermocouple (K)
U	Incertitude totale
u	Vélocité (m/s)
x	Axe en coordonnées cylindriques
x_C	Nombre de moles de carbone
x_i	Variable mesurée
X_k	Fraction molaire de l'espèce k
y	Variable
y_H	Nombre de moles d'hydrogène
Y_k	Fraction massique de l'espèce k
z	Axe vertical de la flamme

Mathématiques :

∇	Gradient de la variable
$\nabla \cdot$	Divergence de la variable
\emptyset	Variable considérée

Indices

0	Air ambiant
1	Maillage fin
2	Maillage moyen
3	Maillage grossier
i	Axe radial r ou axial z
j	Axe radial r ou axial z
k	Espèce

INTRODUCTION

Le gaz naturel est une source d'énergie non renouvelable qui est utilisée, entre autres, dans les turbines à gaz stationnaires et dans les brûleurs industriels afin de produire de l'électricité. Toutefois, son utilisation entraîne des problèmes environnementaux puisque la combustion du gaz naturel produit de grandes quantités d'émissions polluantes telles que les oxydes d'azotes (NO_x), le monoxyde de carbone (CO) et le dioxyde de carbone (CO_2). En effet, les NO_x participent au smog ainsi qu'aux pluies acides tandis que le CO et le CO_2 contribuent à l'effet de serre. Dans le but de réduire les effets négatifs du gaz naturel sur l'environnement, les chercheurs sont poussés à découvrir de nouvelles sources d'énergie qui seront, préférentiellement, moins néfastes pour l'environnement de même que renouvelables. Parmi ces nouvelles sources d'énergie figurent d'ailleurs les gaz synthétiques qui sont produits par un processus de gazéification utilisant diverses matières telles que la biomasse, le charbon et les déchets organiques. Même si la composition des gaz récupérés à la suite de ce processus varie de façon significative, les principales composantes sont l'hydrogène (H_2) ainsi que le monoxyde de carbone (CO) et ils peuvent inclure des quantités variables de méthane (CH_4) et de gaz diluants tels que l'azote (N_2), l'eau (H_2O) et le CO_2 . Ces carburants synthétiques sont actuellement utilisés dans quelques centrales génératrices d'électricité à travers le monde ou obtenus par des procédés de production de biogaz. Comme certains composés des gaz de synthèse participent au réchauffement de la planète lorsque relâchés dans l'atmosphère, leur utilisation devient primordiale pour le mieux-être de notre planète.

L'objectif principal du projet de recherche proposé est la caractérisation expérimentale et numérique de la flamme de carburants synthétiques gazeux, ceux-ci étant composés de diverses concentrations d' H_2 , de CO et de CO_2 . Plus spécifiquement, les objectifs secondaires de cette analyse sont : 1) de vérifier les effets de la variation de la quantité de CO_2 dans le gaz ainsi que ceux de la variation du rapport H_2/CO sur la température de flamme, les émissions polluantes telles que les NO_x , la hauteur de flamme et l'apparence de la flamme; 2) d'analyser l'influence du ratio H_2/CO sur la structure chimique de la flamme lors de la combustion et; 3) de produire un modèle numérique en deux dimensions dans le but

d'obtenir un outil de conception plus représentatif de la réalité. Pour atteindre ces objectifs, quatre montages expérimentaux différents sont utilisés : un premier pour mesurer les émissions polluantes, un deuxième pour les températures de flamme, un troisième pour quantifier les espèces chimiques présentes dans la flamme et un dernier pour obtenir une image qualitative de la concentration d'OH dans la flamme.

Cette thèse est présentée en trois sections répondant à chacun des objectifs secondaires. Pour les deux premiers chapitres, une revue de la littérature résumant les travaux liés à l'atteinte de l'objectif secondaire est présentée. Par la suite, les montages expérimentaux utilisés sont décrits en détail, incluant une analyse d'incertitude, dans le but de permettre au lecteur de bien saisir la démarche suivie. Cette description est ensuite suivie d'une analyse des résultats expérimentaux et d'une conclusion.

Pour le troisième chapitre, une revue de la littérature ainsi qu'une description du montage expérimental sont également de mise. Par la suite, le modèle numérique est présenté avant de passer à l'analyse des résultats. Cette analyse comprend l'étude de l'influence du mécanisme H_2/CO choisi sur les profils des espèces chimiques principales et sur celui de la température de flamme. De plus, l'effet de l'inclusion du phénomène de la radiation est également étudié. Finalement, pour conclure ce chapitre, le mécanisme choisi est validé sur une plage de carburants allant de 100% H_2 à 5% H_2 / 95% CO , ce qui permet d'ailleurs de confirmer les résultats expérimentaux présentés dans le deuxième chapitre.

Finalement, une conclusion générale est apportée sur l'ensemble des résultats présentés dans cette thèse. De plus, des recommandations amenant à des travaux futurs sont suggérées.

CHAPITRE 1

ÉMISSIONS POLLUANTES, TEMPÉRATURE DE FLAMME, APPARENCE DE FLAMME ET HAUTEUR DE FLAMME

1.1 Introduction

Cette première partie est sollicitée par le manque de résultats expérimentaux permettant de caractériser les flammes de mélanges $H_2/CO/CO_2$. Afin d'y remédier, les effets de la variation de la quantité de CO_2 dans le carburant ainsi que ceux de la variation du rapport H_2/CO seront étudiés expérimentalement sur les caractéristiques suivantes : 1) la température de flamme; 2) les émissions polluantes de NO_x ; 3) l'apparence de la flamme, soit principalement au niveau de sa couleur, et; 4) la hauteur de flamme mesurée à partir de la base du brûleur. Ce chapitre est donc divisé de la façon suivante : tout d'abord, une revue de la littérature résume les travaux d'autres chercheurs reliés au présent projet; deuxièmement, la méthodologie expérimentale utilisée, incluant une analyse d'incertitude des résultats, est décrite en détail; troisièmement, les résultats expérimentaux des indices d'émissions des NO_x ($EINO_x$), de la température de flamme, de l'apparence de la flamme et de la hauteur de flamme sont présentés, tout en incluant les effets de la variation de la concentration de CO_2 dans le carburant et du rapport H_2/CO sur les différentes mesures, avant de discuter du comportement des indices d'émissions de NO_x ; finalement, une conclusion résume les principaux points observés. Les résultats de ce chapitre ont d'ailleurs été publiés dans le journal *International Journal of Hydrogen Energy* qui est présenté à l'Annexe I.

1.2 Revue de la littérature

À ce jour, peu d'études semblent avoir été effectuées sur les émissions polluantes de flammes laminaires partiellement prémélangées de mélanges $H_2/CO/CO_2$, flammes obtenues lorsque la quantité d'air prémélangée au carburant est inférieure à la quantité d'air nécessaire pour consommer complètement le carburant. Toutefois, la quantification des émissions pour les mélanges méthane/air et éthane/air a été étudiée et est premièrement résumée dans cette

section. Par la suite, quelques travaux concernant les mélanges H_2/CO sont présentés et regroupés selon deux aspects : ceux traitant de l'effet de l'addition de CO_2 au carburant et ceux traitant de l'effet du ratio H_2/CO . Mentionnons que les travaux portent surtout sur l'effet de la dilution du CO_2 et très rarement sur l'influence du rapport H_2/CO .

1.2.1 Hydrocarbures

Nishioka *et al.* (1994) ont étudié numériquement les caractéristiques des émissions d'oxyde d'azote (NO) pour une flamme méthane/air à contre-courant avec un brûleur de type Bunsen. Selon leurs résultats, l'indice d'émissions des NO_x , soit la quantité en grammes de NO_x formée par la consommation d'un kilogramme de carburant, augmentait à partir d'une richesse (ϕ) de 1,5 pour atteindre un maximum à une richesse de 2,0 avec une valeur de 0,77 g/kg de carburant. Par la suite, une légère diminution était observée et la valeur minimale était atteinte à une richesse de 3,0 avec 0,73 g/kg de carburant. Une plus grande augmentation de la richesse semblait ensuite augmenter la valeur de $EINO_x$ jusqu'à 0,78 g/kg de carburant pour une flamme de diffusion pure.

Gore et Zhan (1996) ont étudié expérimentalement les $EINO_x$ pour des flammes laminares partiellement prémélangées de méthane/air en utilisant un brûleur à double écoulement et en gardant une richesse globale constante de 0,5. Avec une flamme de diffusion, la valeur de $EINO_x$ était de 1,1 g/kg de carburant et est demeurée constante lorsque le niveau de prémélange a été augmenté en ajoutant de l'air au carburant, et ce, jusqu'à ce que la richesse du mélange air/carburant du tube interne (ϕ_B) soit égale à 4,0. À ce point, la valeur de $EINO_x$ a diminué et atteint un minimum de 0,84 g/kg de carburant pour une richesse de 2,0. Cette réduction de $EINO_x$ avec la diminution de ϕ_B pourrait être causée par le mécanisme prompt inverse (Nishioka *et al.*, 1994) et les changements dans le taux de production des NO prompts (Voir Section 1.4.5 pour plus de détails) qui dépendent de la concentration de l'hydrocarbure pour leur formation. La diminution de ϕ_B a ensuite entraîné une augmentation de $EINO_x$ jusqu'à l'extinction de la flamme à une richesse de 1,3. À partir des résultats, Gore et Zhan (1996) ont conclu qu'il y avait un niveau optimum de prémélange partiel minimisant

la valeur de $EINO_x$ et que pour une flamme méthane/air avec double écoulement, le minimum se situait à $\phi_B \approx 2,0$.

Lee *et al.* (2004) ont étudié numériquement et expérimentalement les caractéristiques des émissions de NO_x pour des flammes méthane/air en utilisant une chambre de combustion à double écoulement. La tendance des $EINO_x$ mesurée était très similaire à celle de Gore et Zhan (1996). Les simulations numériques ont toutefois permis de déterminer que les $EINO_x$ prompts augmentaient rapidement jusqu'à une richesse de 1,5 pour ensuite diminuer linéairement avec la richesse. Puisque les NO prompts étaient seulement produits sur la partie externe de la zone du radical méthylidine (CH) dans la flamme, il a été suggéré que la variation de la surface interne de la zone de réaction pourrait expliquer la tendance observée. Pour ce qui est des $EINO_x$ thermiques, Lee *et al.* (2004) ont déterminé qu'ils augmentaient rapidement pour atteindre un maximum à une richesse de 1,5 avant de diminuer lentement, ce qui est expliqué par la réduction de température due à la dilution lorsque la richesse augmentait.

Pour leur part, Kim *et al.* (1995) ont étudié les émissions de NO pour des flammes laminares partiellement prémélangées d'éthane/air en utilisant un brûleur annulaire à double écoulement. Ils ont observé une augmentation des NO pour $\phi_B = 1,0$ à $\phi_B = 1,3$, suivie par une chute rapide de 21 à 25% à $\phi_B = 2,2$ et une augmentation graduelle jusqu'à des valeurs similaires à celle obtenue à $\phi_B = 1,3$. Similairement à Gore et Zhan (1996), Kim *et al.* (1995) ont essayé de trouver un niveau optimal de prémélange partiel pour les flammes éthane/air. À partir de la tendance mesurée, ce niveau optimal serait obtenu à $\phi_B = 2,2$ avec une valeur pour $EINO_x$ de 1,2 g/kg de carburant, ce qui est très similaire à $\phi_B \approx 2,0$ obtenu pour les flammes méthane/air (Gore et Zhan, 1996).

1.2.2 Influence de l'addition de CO_2

Park *et al.* (2004) ont fait une étude numérique dans le but de comprendre l'effet de l'addition de CO_2 sur la structure de flamme et les émissions de NO . Le système était

composé de deux jets opposés, soit l'air et le carburant, et la zone de flamme était située à l'interface où les quantités de mouvement s'équilibraient. Le carburant utilisé était de l'hydrogène prémélangé avec de l'air auquel était ajouté de 10 à 60% de CO₂. Ils ont observé que l'augmentation de CO₂ dans le mélange diminuait la température de flamme puisque l'addition de CO₂ réduisait la population d'espèces chimiques réactives. Ils ont aussi observé que les indices d'émissions de NO (EINO) diminuaient lorsque le CO₂ était ajouté.

Giles *et al.* (2006) ont étudié numériquement les effets de la composition du gaz de synthèse et de la concentration de CO₂ sur la température de flamme et les émissions de NO_x. Les carburants utilisés étaient composés de 50% H₂ / 50% CO et de 45% H₂ / 45% CO / 10% CH₄. La composition de ces carburants a été déterminée à partir de moyennes et d'écart-types calculés sur des gaz synthétiques utilisés dans divers systèmes de génération d'énergie à travers le monde. Comme Park *et al.* (2004), ils ont conclu que l'addition de CO₂ dans le carburant diminuait la température de flamme et conséquemment, les NO_x produits.

Plus récemment, Hui *et al.* (2007) ont effectué des expériences à l'aide d'une chambre de combustion de turbine à gaz dans le but de vérifier les effets de l'addition de CO₂ sur la structure de flamme et les émissions polluantes pour une flamme de diffusion d'un mélange 50% H₂ / 50% CO. Ils ont obtenu une réduction de la formation des NO avec l'addition de CO₂ au carburant et ils ont conclu que cette réduction était due à la diminution de la température de flamme maximale.

1.2.3 Effet du rapport H₂/CO

Park *et al.* (2003) ont réalisé une étude numérique d'un système de jets opposés (air d'un côté et carburant de l'autre) dans le but de comprendre l'effet de la variation de la concentration de CO sur la structure de flamme et les émissions de NO d'une flamme de diffusion composée d'hydrogène et d'argon. De plus, ils ont fait varier le taux d'étirement de la flamme qui est calculé, de façon simple, en divisant la somme des vitesses d'air et de carburant par la distance séparant les deux buses d'éjection. En gardant cette distance

constante, l'augmentation des vitesses permettait de passer d'une flamme plate laminaire (taux d'étirement faible) à une flamme plissée turbulente (taux d'étirement élevé). Pour un taux d'étirement faible, l'augmentation de la concentration de CO ne semblait avoir aucune influence sur la température de flamme tandis que pour un taux d'étirement plus élevé, une faible augmentation de la température de flamme maximale a été observée et celle-ci pourrait être due à la concentration plus élevée des espèces réactives. Concernant les émissions de NO, les résultats de Park *et al.* (2003) ont démontré que l'addition de CO dans le carburant provoquait une augmentation des NO thermiques ainsi qu'une réduction des NO prompts, ce qui entraînait toutefois une augmentation des émissions totales de NO, peu importe le taux d'étirement.

Som *et al.* (2008) ont étudié expérimentalement et numériquement l'influence de la pression sur la combustion et les émissions de NO_x pour différents mélanges H₂/CO à l'aide d'un système de jets opposés. Ils ont observé une augmentation de la température de flamme avec l'ajout d'H₂ au mélange tandis que la structure de flamme était très similaire pour tous les ratios H₂/CO étudiés. De plus, la concentration de NO, qui a été obtenue numériquement, était plus basse pour le mélange 50% CO / 50% H₂ que pour celui 95% CO / 5% H₂ même si la température de flamme de ce dernier mélange était plus basse. Une hypothèse a donc été posée, soit que le mécanisme d'étagement (reburn) pourrait être responsable pour la concentration plus faible de NO pour le carburant 50% CO / 50% H₂ à cause de l'augmentation de la quantité de radicaux H dans la flamme qui réduisent la production de NO par l'équation $\text{NO} + \text{H} + \text{M} \rightarrow \text{HNO} + \text{M}$. Le phénomène d'étagement « consiste à introduire de façon fractionnée dans le brûleur, soit le combustible (étagement du combustible), soit l'air (étagement de l'air), en vue de réduire les émissions de NO_x » (Groupement Français de Combustion, 2011).

1.2.4 Conclusion

En somme, l'ajout de CO₂ dans le carburant devrait réduire la température de flamme ainsi que les indices d'émissions de NO. Pour ce qui est de l'influence du ratio H₂/CO, la

réduction du ratio entraînerait l'augmentation de la production de NO tandis que la température de flamme devrait être plus basse. Toutefois, cette revue de littérature illustre le peu de données expérimentales disponibles sur les gaz de synthèse et les émissions de NO_x .

L'objectif principal est donc d'obtenir des données sur les indices d'émissions de NO_x sur une grande plage de richesses à l'aide de carburants synthétiques représentatifs de la production actuelle. Afin d'atteindre cet objectif, les sous-objectifs suivants sont définis :

1. Observer l'effet de la variation de la concentration de CO_2 dans le carburant sur les indices d'émissions de NO_x , sur la température de flamme, sur l'apparence de la flamme et sur la hauteur de flamme;
2. Observer l'effet de la variation du ratio H_2/CO du carburant sur les indices d'émissions de NO_x , sur la température de flamme, sur l'apparence de la flamme et sur la hauteur de flamme.

L'originalité de la présente section relève du fait que les carburants déterminés permettent de bien comprendre les effets de la variation de la quantité de CO_2 ainsi que ceux de la variation du rapport H_2/CO sur plusieurs paramètres : émissions polluantes, température de flamme, apparence de flamme et hauteur de flamme. Selon les travaux présentés dans la revue littéraire, une grande importance a surtout été portée sur la variation du CO_2 tandis que peu d'études ont été faites sur les effets de la variation du ratio H_2/CO .

1.3 Méthodologie expérimentale

Afin d'atteindre les objectifs définis précédemment, une étude expérimentale a été entreprise et la démarche utilisée est décrite dans la présente section. Tout d'abord, la détermination des carburants de l'étude est expliquée en détail suivie d'une description du brûleur et des différents montages expérimentaux utilisés. Finalement, un résumé des conditions d'opération ainsi qu'une analyse d'incertitude complètent cette section.

1.3.1 Détermination des carburants

Tout d'abord, une recherche dans la littérature de différents gaz synthétiques connus a été effectuée dans le but de déterminer les carburants qui seront utilisés lors de la présente étude. En effet, en regroupant tous ces gaz dans un tableau selon leur composition, il a été possible de remarquer qu'ils sont principalement composés d' H_2 et de CO auxquels peuvent s'ajouter des quantités significatives de CO_2 , de N_2 et de CH_4 . Toutefois, lorsque le CO_2 est présent en grande quantité, on retrouve peu ou pas de N_2 ou de CH_4 dans le carburant. À la suite de cette observation, le choix de la composition des carburants de la présente étude s'est donc arrêté sur les gaz synthétiques composés principalement d' H_2 , de CO et de CO_2 . Le Tableau 1.1 regroupe donc les carburants qui ont été tirés de la littérature de même que la moyenne et l'écart-type des différentes espèces chimiques retrouvées dans les divers carburants présentés. Les carburants 1 à 6 sont utilisés dans des turbines à gaz stationnaires pour produire de l'électricité dans différentes régions du monde (Giles, Som et Aggarwal, 2006), mais la source de matière première pour la production du gaz synthétique est inconnue. En ce qui concerne les carburants 8 et 9, ceux-ci sont utilisés dans un réacteur à écoulement et un tube à chocs, respectivement. Finalement, les autres carburants sont seulement le résultat d'un procédé de transformation et ne sont pas utilisés comme source d'énergie.

À l'aide des résultats du Tableau 1.1, cinq carburants ont été choisis en faisant varier les concentrations moyennes d' H_2 , de CO et de CO_2 selon les écarts-types obtenus tout en négligeant la présence de N_2 et de CH_4 puisque les concentrations sont très faibles. Le Tableau 1.2 regroupe donc les cinq carburants utilisés lors de la présente étude. On y retrouve également, pour chacun des carburants, le pouvoir calorifique inférieur (PCI) qui correspond à la quantité théorique d'énergie dégagée lors de la combustion d'un kilogramme de carburant. La valeur de PCI a été incluse puisqu'il devrait y avoir un lien entre le PCI et la température de flamme ainsi que possiblement entre le PCI et l'indice d'émissions des NO_x .

Tableau 1.1 Composition de différents carburants synthétiques

Carburant	Référence	H ₂ (%)	CO (%)	CO ₂ (%)	N ₂ (%)	CH ₄ (%)
1 ^a	Tampa	37,2	46,6	13,3	2,5	0,1
2 ^a	El Dorado	35,4	45	17,1	2,1	---
3 ^a	Pernis	34,4	35,1	30	0,2	0,3
4 ^a	Exxon Singapore	44,5	35,4	17,9	1,4	0,5
5 ^a	Motiva Delaware	32	49,5	15,8	2,15	0,1
6 ^a	PIEMSA	42,3	47,77	8,01	2,05	0,08
7 ^b	Sciure	68,1	30,1	0,9	---	0,9
8 ^c	UTRC	38,6	51,1	10,3	---	---
9 ^c	UCI	50	50	---	---	---
10 ^d	Biomasse	38,38	24,89	27,62	---	7
11 ^d	Biomasse	50	15	30	---	4,5
12 ^e	Biomasse de bois	47,9	22,1	26,1	---	2,6
13 ^e	Biomasse de bois	37,5	23,9	33,7	---	4,6
14 ^e	Biomasse de charbon	42	15	42	---	---
Moyenne		42,7	35,1	21	1,7	2,1
Écart-type		9,2	13,3	11,7	0,8	2,5

^a (Giles, Som et Aggarwal, 2006) ^b (Wang *et al.*, 2007) ^c (Petersen *et al.*, 2007) ^d (Lv *et al.*, 2007)

^e (Kumabe *et al.*, 2007)

Tableau 1.2 Carburants de l'étude

Carburant	H ₂	CO	CO ₂	Rapport H ₂ /CO	PCI (kJ/kg de carburant)
1	45%	35%	20%	1,3	15 397
2	50%	40%	10%	1,3	19 839
3	40%	30%	30%	1,3	11 949
4	35%	45%	20%	0,8	13 855
5	55%	25%	20%	2,2	17 414

La détermination de ces cinq carburants a permis d'étudier deux phénomènes distincts. Tout d'abord, la première étape consistait à vérifier l'effet de la variation de la quantité de diluant, soit le CO_2 , dans le carburant. Les carburants 1, 2 et 3, où la quantité de CO_2 varie entre 10% et 30% tout en gardant un rapport H_2/CO similaire entre les trois gaz, ont donc été utilisés. Pour ces carburants, on remarque que l'augmentation de la concentration de CO_2 diminue le PCI. Pour ce qui est de la deuxième étape, où les carburants 1, 4 et 5 ont été utilisés, la quantité de diluant est demeurée constante à 20% tandis que le ratio H_2/CO variait de 0,8 à 2,2. Pour ces carburants, l'augmentation de la concentration d' H_2 et, par conséquent, la diminution de la concentration de CO entraînent une augmentation du PCI. Finalement, mentionnons que le carburant 1 était le carburant de base de l'étude et qu'il a été utilisé pour effectuer les différentes comparaisons. De plus, ces carburants ont été préassemblés dans des bouteilles à haute pression standard et l'incertitude des concentrations, telle que précisée par le manufacturier, varie entre 0,2% et 0,8%.

1.3.2 Description du brûleur

Le brûleur possède un diamètre interne de 3,175 mm, un diamètre externe de 25,4 mm et une hauteur totale de 18,7 cm. Plus précisément, le diamètre de 3,175 mm est constant sur une longueur de 7,6 cm avant de diminuer à 1 mm sur une longueur de 5,1 cm afin d'étouffer tout retour de flamme possible. Le choix du diamètre permet d'assurer un débit laminaire ($Re < 2000$) et une vitesse moyenne du mélange au moins cinq fois plus grande que l'estimé de la vitesse de flamme (Natarajan, Lieuwen et Seitzman, 2007). De plus, la longueur du brûleur est d'au moins 50 fois le diamètre du trou afin que l'écoulement soit laminaire et que le profil de vitesse à la sortie du brûleur soit complètement développé (Natarajan, Lieuwen et Seitzman, 2007). Finalement, la distance entre le point de mélange de l'air et du carburant est au moins 150 fois plus grande que la valeur du diamètre du brûleur afin d'assurer l'homogénéité du mélange air/carburant (Hariharan, Periasamy et Gollahalli, 2007).

1.3.3 Émissions polluantes

La Figure 1.1 présente le schéma global du montage expérimental utilisé lors de la mesure des émissions polluantes. Tout d'abord, le carburant ainsi que l'air étaient entreposés séparément dans des bouteilles à haute pression. Les débits des composantes ont été ajustés à l'aide de rotamètres (Fisher Scientific #11-163-75J) calibrés et le prémélange s'effectuait avant d'entrer à la base du brûleur. Une fois la flamme allumée, les produits de la combustion étaient captés dans une hotte fermée, ayant un diamètre de 20 cm et une profondeur de 40 cm, positionnée directement au-dessus du brûleur pour diminuer le mélange avec l'air ambiant ainsi que les perturbations provenant du mouvement de l'air ambiant (Lee, Mitrovic et Wang, 2000). Selon Lyle *et al.* (1999), le diamètre du conduit circulaire ainsi que sa position ont peu d'influence sur les résultats, car ils ont observé une variation des résultats de moins de 10% pour des mesures prises avec deux diamètres de conduite différents ainsi que pour deux positions différentes. Par la suite, une sonde placée dans la partie supérieure et centrale de la conduite, similairement au montage de Lee *et al.* (2000), permettait d'aspirer les gaz accumulés à l'aide d'une pompe. Ceux-ci étaient ensuite refroidis dans un condenseur afin d'éliminer la présence d'eau (H_2O) avant d'être dirigés vers les analyseurs. Les NO_x ont été mesurés à l'aide d'un détecteur à chimioluminescence chauffé (HCLD). Cet analyseur utilise le principe de la chimioluminescence pour obtenir les concentrations de NO ou NO_x dans l'échantillon gazeux, c'est-à-dire que la lumière émise lors de la réaction entre l'ozone et le NO pour produire du NO_2 et de l' O_2 est mesurée et que celle-ci est proportionnelle au débit massique de NO_2 entrant dans la chambre de réaction de l'analyseur. Le CO et le CO_2 sont mesurés avec des analyseurs à infrarouge non dispersif (NDIR). Ce système utilise deux faisceaux infrarouges, un passant dans une cellule de référence et l'autre, dans l'échantillon à mesurer. L'énergie absorbée par la cellule contenant le gaz échantillonné est ensuite comparée à celle absorbée par la cellule de référence en considérant que la quantité d'énergie absorbée est proportionnelle à la concentration de la composante mesurée. L' O_2 a été mesuré avec une pile à combustible galvanique composée d'une cathode, d'une anode et d'un électrolyte contenu dans une membrane imperméable. L'échantillon passe au-dessus de la membrane et l'oxygène se diffuse à l'intérieur de la pile où il réagit

avec l'électrolyte. Cette réaction produit un courant électrique proportionnel à la concentration d' O_2 présente dans l'échantillon. Tous les analyseurs ont été calibrés aux limites de la plage d'opération à l'aide des gaz appropriés. Lorsque les mesures des polluants étaient stabilisées, elles ont été acquises à 100 Hz pendant 10 secondes à l'aide d'un programme LabVIEW et les données ont ensuite été utilisées pour calculer la valeur moyenne ainsi que son écart-type.

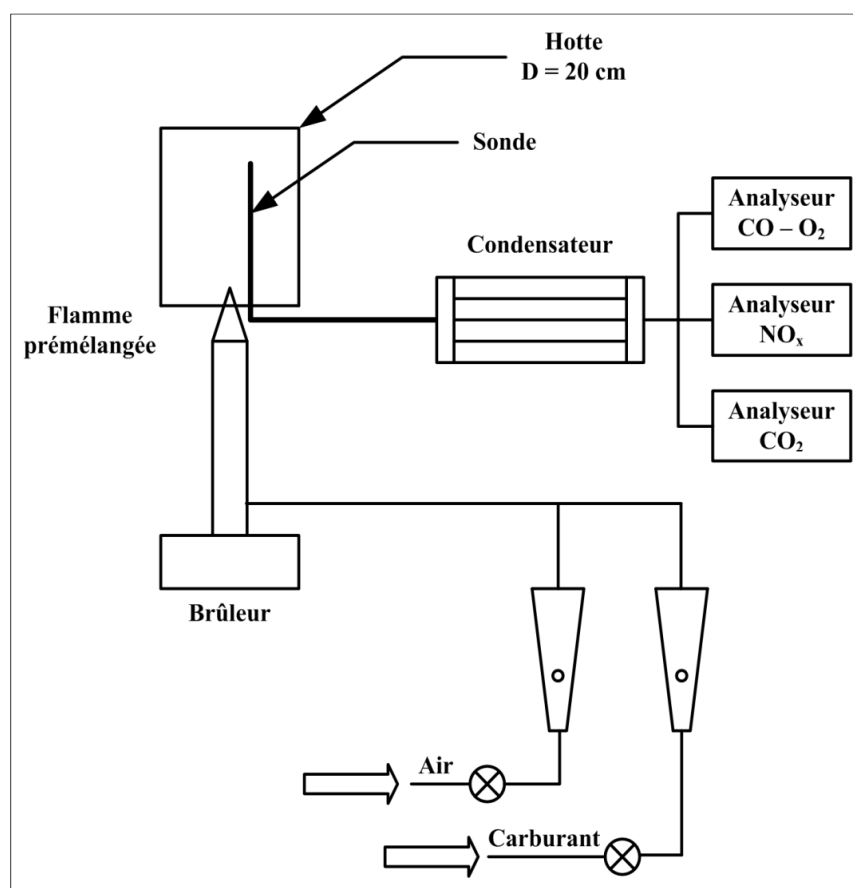


Figure 1.1 Montage expérimental pour les mesures des émissions polluantes

Les indices d'émissions, en g/kg de carburant, ont été calculés à l'aide de l'Équation 1.1 (Turns, 2000), où X représente la fraction molaire de l'espèce, x_C est le nombre de moles de carbone dans le carburant et MM est la masse molaire :

$$EI_k = 1000 \frac{X_k}{(X_{CO} + X_{CO_2})} \frac{x_C \cdot MM_{NO_2}}{MM_{Carburant}}, \quad (k = NO, NO_2, NO_x) \quad (1.1)$$

De plus, afin de pouvoir comparer les résultats des indices d'émissions sur un même niveau de dilution, la valeur des NO_x mesurée a été corrigée à 15% d' O_2 selon l'Équation 1.2 (Turns, 2000), où $NO_{x,1}$ et $X_{O_2,1}$ sont les valeurs mesurées lors des expérimentations, x_C et y_H sont le nombre de moles de C et de H respectivement et $X_{O_2,2}$ est la valeur d' O_2 déterminée pour la correction, soit 15% :

$$NO_{x,2}@15\% O_2 = NO_{x,1} \frac{4.76 \left[\frac{x_C + (1 - X_{O_2,1}) \cdot y_H/4}{1 - 4.76X_{O_2,1}} \right] - y_H/4}{4.76 \left[\frac{x_C + (1 - X_{O_2,2}) \cdot y_H/4}{1 - 4.76X_{O_2,2}} \right] - y_H/4} \quad (1.2)$$

1.3.4 Températures de flamme

Les mesures de température de flamme ont été prises à 50% (milieu de la flamme) de la hauteur visible de la flamme afin de s'assurer que les mesures de température étaient prises dans la même zone de réaction pour chaque flamme, tel que suggéré par Hariharan *et al.* (2007). Un thermocouple de type G (Tungstène / Tungstène-26% Rhénium) a été utilisé puisqu'il permet de prendre des mesures à des températures allant jusqu'à 2320°C. La température a été acquise à 100 Hz pendant 10 secondes à l'aide d'un programme LabVIEW et les données ont ensuite été utilisées pour calculer la valeur moyenne ainsi que son écart-type.

De plus, comme il y a présence d' H_2O et de CO_2 dans le carburant et les gaz brûlés, un transfert d'énergie par radiation a lieu entre la flamme et son environnement. Il a donc été nécessaire de corriger la température obtenue par le thermocouple afin d'obtenir la température de flamme réelle. L'Équation 1.3 représente la correction effectuée (Friedman, 1953) :

$$T_{corrigée} = T_{thermocouple} + \left(\varepsilon_T \cdot \sigma_{SB} \cdot d / 2 \cdot \lambda \right) (T_{thermocouple}^4 - T_{mur}^4) \quad (1.3)$$

Où $T_{thermocouple}$ est la température mesurée (K), ε_T est l'émissivité du thermocouple (sans unités), σ_{SB} est la constante de Stefan-Boltzmann ($5,67 \times 10^{-8} \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$), d est le diamètre du thermocouple ($15,24 \times 10^{-5} \text{ m}$), λ est la conductivité thermique du gaz ($\text{W/m} \cdot \text{K}$) et T_{mur} est la température du mur (K), mesurée à l'aide d'un thermocouple de type K. Pour une température maximale mesurée de 1800 K, la correction était d'environ 75 K.

1.3.5 Hauteur visible de flamme

La hauteur visible moyenne de la flamme a été obtenue en moyennant 30 images prises à l'aide d'une caméra numérique (Canon PowerShot A430). Cette procédure est similaire à celle de Lyle *et al.* (1999) pour des flammes méthane-air. Le nombre d'images a été jugé suffisant puisque l'augmentation de ce nombre a démontré que la hauteur moyenne de flamme mesurée demeurerait constante à $\pm 5\%$, ce qui correspond à l'incertitude de ce type de mesure (Lyle *et al.*, 1999).

1.3.6 Conditions d'opération

Le Tableau 1.3 résume les conditions d'opération pour les flammes laminaires partiellement prémélangées et de diffusion considérées dans cette étude. La richesse (ϕ) représente le niveau de prémélange partiel air-carburant par rapport à un mélange stoechiométrique (quantité minimale permettant l'oxydation complète du carburant), où $\phi = 1$ pour une flamme prémélangée et $\phi = \infty$ pour une flamme de diffusion. Les débits des carburants et de l'air ont été ajustés afin de garder un débit laminaire à la sortie du brûleur et un nombre de Reynolds constant à 1 400. Pour ce nombre de Reynolds et selon le carburant, la vitesse moyenne du mélange variait entre 9,4 m/s et 12,5 m/s pour les flammes de diffusion et entre 4,9 m/s et 5,3 m/s pour les flammes prémélangées près de la stoechiométrie.

Tableau 1.3 Conditions d'opération

Paramètre d'opération	Valeur
Richesse ϕ	1,0 à l'infini (14 valeurs)
Température initiale du mélange, K	295
Pression du mélange, atm	1
Nombre de Reynolds	1 400
Vitesse moyenne (flamme de diffusion)	Entre 9,4 et 12,5 m/s
Vitesse moyenne (flamme prémélangée)	Entre 4,9 et 5,3 m/s

1.3.7 Incertitude des mesures expérimentales

Lors des expérimentations, un certain niveau d'erreur est associé à chaque instrument utilisé, ce qui entraîne éventuellement une incertitude sur les résultats finaux. D'ailleurs, le fait de présenter seulement la déviation des mesures par rapport à une valeur moyenne aboutit en une méthode indiquant seulement la précision de l'expérience et non l'incertitude globale (de Vries *et al.*, 2011). Pour obtenir cette incertitude globale, il faut donc calculer l'incertitude de chacune des mesures effectuées avant de les combiner entre elles selon les équations utilisées lors de l'analyse.

1.3.7.1 Incertitude globale d'une mesure simple

L'incertitude totale, U , d'une variable donnée, χ , est obtenue à l'aide de l'Équation 1.4 (Moffat, 1988), où B_{χ_i} représente l'incertitude systématique de la variable, $t_{v,0,95}$, le multiplicateur t de la loi de Student pour un intervalle de confiance de 95% et ν degrés de liberté, et $S_{\bar{\chi}_i}$, l'incertitude aléatoire. Ces deux incertitudes peuvent d'ailleurs être obtenues à l'aide des Équations 1.5 et 1.6 respectivement, où B_i est l'incertitude systématique individuelle, σ , l'écart-type mesuré lors de la prise de données, et N_T , le nombre total de mesures effectuées. Dans le but d'alléger le texte, toutes les valeurs de B_i utilisées pour

obtenir la valeur de B_{χ_i} de chacun des appareils de mesure sont présentées dans le Tableau-A II-1 de l'Annexe II.

$$U_{0.95} = \sqrt{(B_{\chi_i})^2 + (t_{v,0.95} S_{\bar{\chi}_i})^2} \quad (1.4)$$

$$B_{\chi_i} = \sqrt{\sum_{i=1}^M B_i^2} \quad (1.5)$$

$$S_{\bar{\chi}_i} = \frac{\sigma}{\sqrt{N_T}} \quad (1.6)$$

Le Tableau 1.4 résume l'incertitude globale des différentes mesures expérimentales effectuées pour le carburant 1. Les valeurs maximales observées pour chacune des mesures expérimentales sont inférieures à 11%. Les valeurs pour les autres carburants sont présentées dans le Tableau-A II-2 de l'Annexe II.

Tableau 1.4 Incertitude totale des différentes mesures
pour le carburant 1

Équipement	Incertitude totale $U_{0.95}$	
	Minimum	Maximum
$T_{\text{thermocouple}}$ (K)	1,00%	1,02%
T_{mur} (K)	0,75%	0,76%
Mesure O_2 (%)	0,43%	0,43%
Mesure CO (%)	0,17%	0,17%
Mesure CO_2 (%)	0,25%	0,25%
Mesure NO_x (ppm)	1,24%	10,72%
Hauteur (cm)	1,12%	8,89%

1.3.7.2 Incertitude des résultats expérimentaux

L'utilisation d'équations pour effectuer l'analyse des résultats entraîne l'accumulation des incertitudes individuelles calculées précédemment. Il est donc nécessaire de les combiner pour obtenir l'incertitude globale des résultats expérimentaux. Le calcul de cette incertitude peut être obtenu à l'aide de l'Équation 1.7 (Lee, 2008) :

$$(U_y)_{max} = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{df_1}{dx_i} U_i \right)^2} \quad (1.7)$$

Où U_y est l'incertitude finale de la variable y , f_1 , la fonction pour obtenir la variable y et x_i , la variable mesurée. Pour connaître la dérivée de l'équation f_1 en fonction de la variable x_i , il est possible d'approximer la solution en utilisant l'Équation 1.8 (Hughes-Hallett et M. Gleason, 1999) :

$$\frac{df_1}{dx_i} = \frac{f_1(x_2) - f_1(x_1)}{x_2 - x_1} \quad (1.8)$$

Où x_1 est la valeur connue de la variable et $x_2 = x_1 + 0,0000001$. Le Tableau 1.5 regroupe l'incertitude globale maximale et minimale des valeurs calculées pour les cinq carburants tandis que les valeurs des incertitudes globales pour chaque richesse sont présentées à l'Annexe II. Une incertitude maximale très élevée a été décelée parmi les résultats des $EINO_x$. Toutefois, cette incertitude élevée est présente seulement pour quelques points où les NO_x mesurés sont très faibles et s'explique par une mesure sous la limite minimale détectable de l'appareil (1 ppm).

Tableau 1.5 Incertitude globale des valeurs calculées

	Valeur calculée	Incertitude globale $(U_y)_{max}$	
		Minimum	Maximum
Carburant 1	EINO _x (g/kg de carburant)	1,80%	12,33% *
	T _{corrigée} (K)	1,00%	1,02%
	Richesse	1,97%	3,70%
Carburant 2	EINO _x (g/kg de carburant)	1,33%	22,59%
	T _{corrigée} (K)	1,00%	1,00%
	Richesse	1,89%	3,12%
Carburant 3	EINO _x (g/kg de carburant)	2,34%	13,62% *
	T _{corrigée} (K)	1,00%	1,01%
	Richesse	2,06%	3,73%
Carburant 4	EINO _x (g/kg de carburant)	1,87%	12,24%
	T _{corrigée} (K)	1,00%	1,01%
	Richesse	2,04%	3,72%
Carburant 5	EINO _x (g/kg de carburant)	1,87%	14,17% *
	T _{corrigée} (K)	1,00%	1,00%
	Richesse	1,94%	3,10%

* Cette incertitude maximale n'inclut pas les mesures sous la limite de détectabilité de l'appareil.

1.4 Résultats expérimentaux et discussion

Cette section présente les résultats des indices d'émissions des NO_x suivis de la description des mesures de température de flamme, de l'apparence de la flamme et des hauteurs visibles de flamme. Par la suite, une brève discussion sur le comportement observé des indices d'émissions des NO_x termine cette section.

1.4.1 Émissions polluantes

La Figure 1.2 présente l'influence de la concentration de CO_2 dans le carburant sur les indices d'émissions de NO_x en fonction de la richesse du mélange. Pour le carburant de référence (carburant 1), soit celui contenant 20% de CO_2 , l'indice d'émissions augmente rapidement pour une richesse variant entre 1,0 et 1,6 et atteint un plateau autour de la valeur maximale avant de diminuer légèrement à partir d'une richesse de 3,85 jusqu'à la flamme de diffusion (richesse infinie). L'augmentation ou la diminution de la concentration de CO_2 donne des tendances similaires à celle du carburant de référence. Toutefois, l'indice d'émissions des NO_x diminue avec l'augmentation de la quantité de CO_2 dans le carburant, ce qui a aussi été observé par Park *et al.* (2004), Giles *et al.* (2006) et Hui *et al.* (2007). De plus, avec une concentration de 30% de CO_2 , l'indice d'émissions est plutôt constant sur la plage de richesses couverte. À l'opposé, une plus grande variation entre la valeur maximale et minimale de l'indice d'émissions est observée avec le carburant contenant le moins de CO_2 , soit 10%.

Pour comparer avec les résultats présents dans la littérature, le ratio $\text{EINO}_x/\text{EINO}$ est utilisé et, tel que spécifié par Lyle *et al.* (1999) et Kim *et al.* (1995), l'indice d'émissions des NO_x est basé sur le poids moléculaire du NO_2 même si le NO en est la principale composante. Le carburant 2, soit celui avec 10% de CO_2 , démontre un ratio moyenné de 1,68 pour toute la plage de richesses couverte lors des présents travaux. Cette valeur est très similaire à celle de 1,64 présentée par Lyle *et al.* (1999) pour une flamme de diffusion turbulente de méthane. L'augmentation de la concentration de CO_2 dans le carburant à 20% et 30% résulte en une augmentation du ratio $\text{EINO}_x/\text{EINO}$ à 2,68 et 3,4, respectivement, ce qui suggère une variation de la concentration de NO ou de NO_2 . Pour évaluer cette variation, le rapport $\text{EINO}_2/\text{EINO}$ est calculé pour les trois carburants. Lorsque la concentration de CO_2 augmente, le ratio augmente de 0,68 (10% CO_2) à 1,68 (20% CO_2) à 2,4 (30% CO_2), ce qui indique une plus grande réduction dans la quantité de NO que dans celle des NO_2 . Une augmentation de la zone de basse température de la flamme lorsque la quantité de CO_2 dans le carburant augmente pourrait expliquer la réduction des NO (Bowman, 1992), car ceux-ci

sont formés à haute température ($T > 1\,800\text{ K}$) alors que les NO_2 sont formés à basse température ($T < 1\,500\text{ K}$). Le Tableau 1.6 présente un résumé de la variation des ratios $\text{EINO}_x/\text{EINO}$ et $\text{EINO}_2/\text{EINO}$.

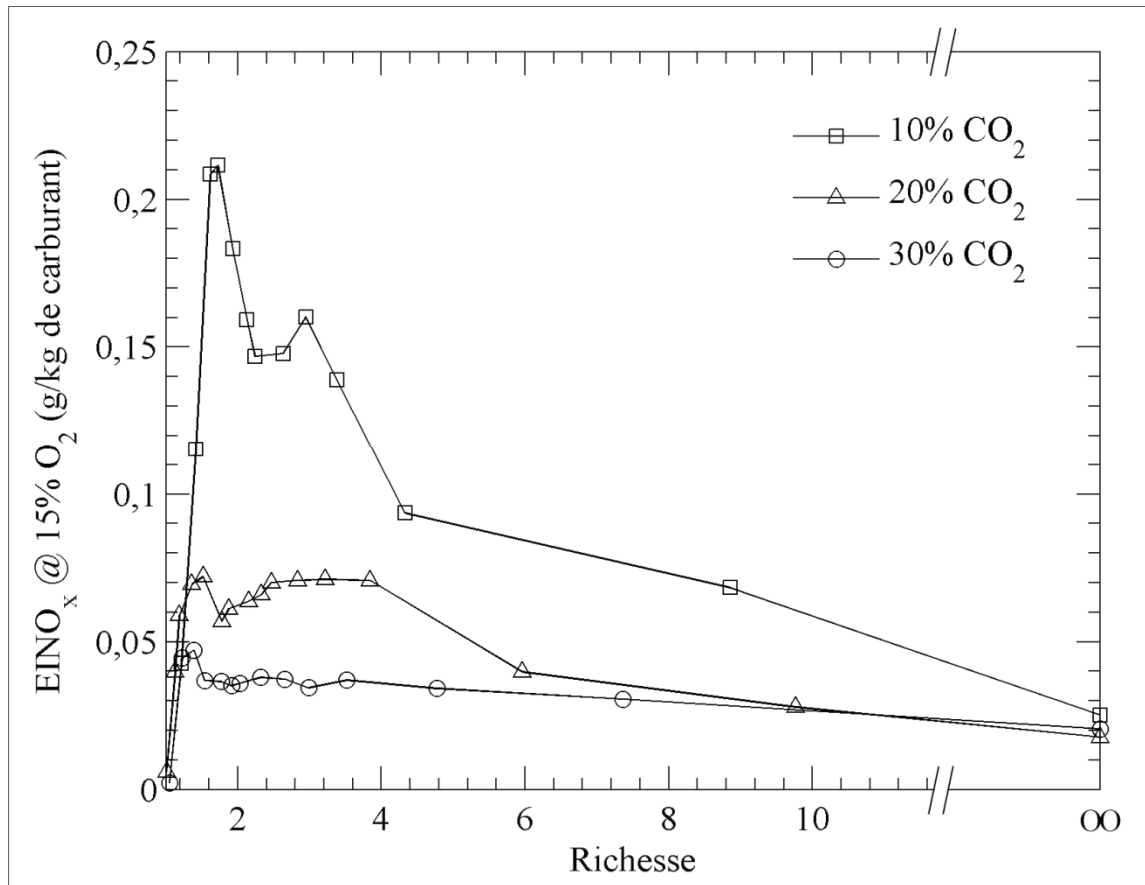


Figure 1.2 Influence de la quantité de CO_2 sur EINO_x

Tableau 1.6 Ratios moyennés $\text{EINO}_x/\text{EINO}$ et $\text{EINO}_2/\text{EINO}$

Concentration de CO_2	$\text{EINO}_x/\text{EINO}$	$\text{EINO}_2/\text{EINO}$
10%	1,68	0,68
20%	2,68	1,68
30%	3,4	2,4

La Figure 1.3 présente l'effet du ratio H_2/CO sur l'indice d'émissions des NO_x en fonction de la richesse du mélange. La variation de l'indice est très similaire pour les trois carburants sur la plage de richesses couverte. De plus, le ratio H_2/CO a une plus grande influence sur les $EINO_x$ pour des richesses comprises entre 1,0 et 2,0. Pour les flammes laminaires partiellement prémélangées ayant une richesse supérieure à 2,0, la variation du rapport H_2/CO semble n'avoir aucune conséquence sur l'indice d'émissions des NO_x .

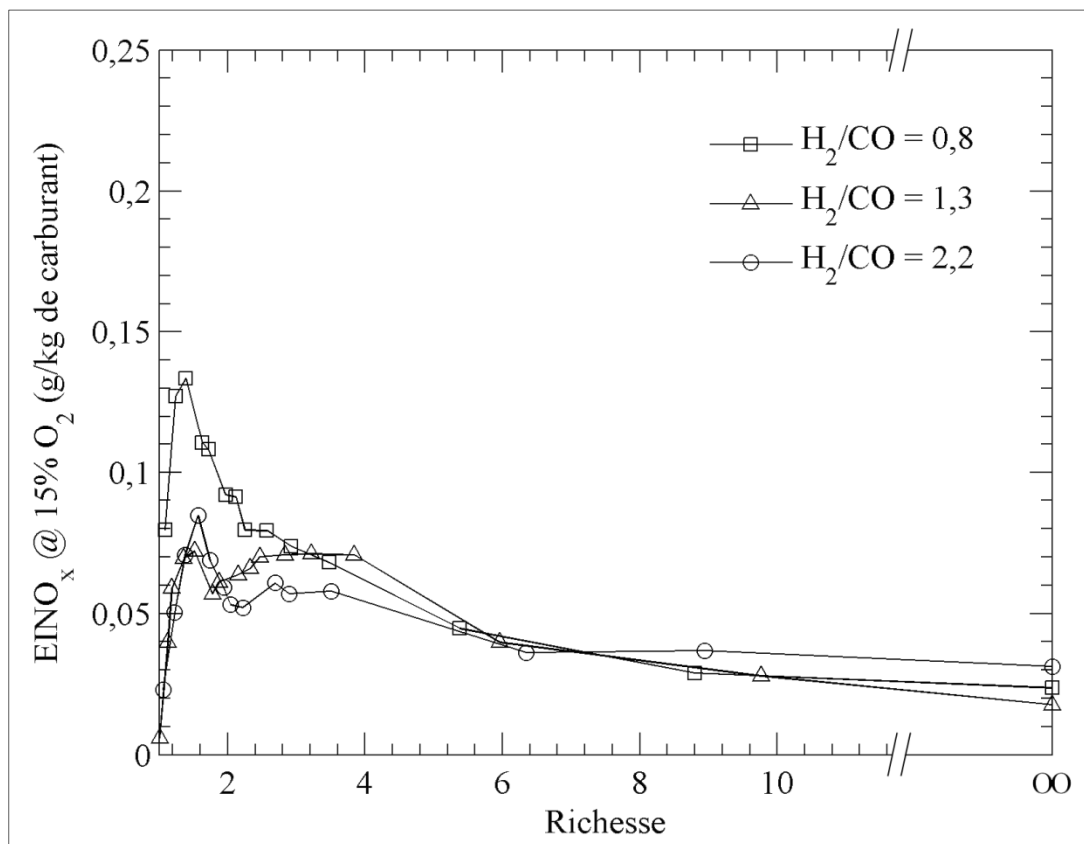


Figure 1.3 Influence du rapport H_2/CO sur $EINO_x$

La tendance présentée sur la Figure 1.3 est très similaire à celle observée pour des flammes méthane/air (Gore et Zhan, 1996; Lee, Oh et Kim, 2004; Lyle *et al.*, 1999) et éthane/air (Kim *et al.*, 1995). La principale différence entre les gaz de synthèse et les carburants d'hydrocarbures gazeux est pour une richesse supérieure à 3,5. En effet, pour les gaz de synthèse de la Figure 1.3, $EINO_x$ diminue graduellement tandis qu'il a été rapporté comme étant constant pour les carburants d'hydrocarbures gazeux. Sinon, même la richesse à

laquelle l'indice d'émissions minimum est atteint dans la flamme partiellement prémélangée est similaire entre les deux types de carburants. Pour les gaz de synthèse, la valeur minimale se situe entre une richesse de 1,8 et 2,2 tandis que le minimum a été observé entre 1,9 et 2,1 pour une flamme laminaire de méthane (Gore et Zhan, 1996) et à une richesse de 2,2 pour l'éthane (Kim *et al.*, 1995).

Pour ce qui est de l'effet du rapport H_2/CO sur les ratios $EINO_x/EINO$ et $EINO_2/EINO$, les observations suivantes ont été notées. Tout d'abord, le ratio $EINO_x/EINO$ peut être considéré comme constant pour le carburant 4 ($H_2/CO = 0,8$) et pour le carburant 1 ($H_2/CO = 1,3$) tandis qu'il diminue à une valeur de 1,66 pour le carburant 5 ($H_2/CO = 2,2$). Deuxièmement, les ratios $EINO_2/EINO$ ont aussi été calculés pour les trois carburants, révélant une tendance similaire à celle observée pour les ratios $EINO_x/EINO$. En effet, le ratio $EINO_2/EINO$ est presque constant pour les carburants 1 et 4 ($H_2/CO = 0,8$ et $1,3$, respectivement) et diminue à 0,65 pour le carburant 5 ($H_2/CO = 2,2$). La variation observée indique une augmentation en NO plus importante qu'en NO_2 quand le rapport H_2/CO est maximum. Cette réduction de NO_2 pour le carburant 5, qui a le ratio H_2/CO le plus élevé, pourrait être reliée à une plus grande température de flamme, cette dernière étant rapportée dans la section suivante. La minime augmentation de température associée avec le carburant 5 pourrait amener la température à la limite inférieure à laquelle la production des NO thermiques commence à être importante. Le Tableau 1.7 présente un résumé de la variation des ratios $EINO_x/EINO$ et $EINO_2/EINO$.

Tableau 1.7 Ratios moyennés $EINO_x/EINO$ et $EINO_2/EINO$

Rapport H_2/CO	$EINO_x/EINO$	$EINO_2/EINO$
0,8	2,37	1,37
1,3	2,68	1,68
2,2	1,66	0,65

1.4.2 Températures de flamme

Pour compléter l'explication des résultats précédents, des mesures de la température de flamme à 50% de la hauteur visible de la flamme ont été effectuées. D'autres mesures avaient été prises à 10% et 25% de la hauteur visible de la flamme, mais les tendances observées étaient moins concluantes qu'à 50%. De plus, les températures mesurées étaient plus élevées à 50% de la hauteur visible de la flamme, ce qui permet de faire un lien avec la production des NO_x thermiques (*Voir* Section 1.4.5 pour plus de détails). La Figure 1.4 présente l'effet de la concentration de CO_2 dans le carburant sur la température de flamme mesurée en fonction de la richesse du mélange. La tendance générale, en commençant avec un mélange stoechiométrique ($\phi = 1$), est une augmentation rapide de la température jusqu'à un maximum observé à une richesse d'environ 1,5 pour les trois carburants. Par la suite, la température de flamme diminue graduellement jusqu'à l'obtention d'une flamme de diffusion pure. Toutefois, le carburant 2, contenant seulement 10% de CO_2 , agit un peu différemment puisque la température de flamme atteint un plateau pour les mélanges ayant une richesse comprise entre 2,0 et 4,0, avant de diminuer par la suite jusqu'à la flamme de diffusion pure. La Figure 1.4 illustre également que la température de flamme diminue avec l'augmentation de la quantité de CO_2 dans le carburant puisque le pouvoir calorifique inférieur (PCI) du carburant est réduit, tel que présenté dans le Tableau 1.2.

La Figure 1.5 illustre l'effet du ratio H_2/CO sur la température de flamme mesurée en fonction de la richesse du mélange. La variation de la température de flamme suit la tendance générale observée pour l'addition de CO_2 au carburant avec une température maximale observée pour une richesse de 1,5. Les résultats expérimentaux démontrent également qu'une diminution du ratio H_2/CO entraîne une diminution des températures de flamme pour les richesses entre 2,0 et 8,0 seulement. Pour ce qui est des mesures de températures pour des richesses entre 1,0 et 2,0, les petites différences observées entre les carburants peuvent être associées aux difficultés rencontrées pour la prise de mesure à une hauteur exacte de 50% de la flamme puisque les hauteurs de flamme variaient entre 12 et 40 mm. L'influence du rapport H_2/CO sur la mesure de température d'une flamme partiellement prémélangée peut

être reliée au PCI du carburant (*Voir* Tableau 1.2), car un PCI élevé résulte en une température de flamme plus élevée. Le Tableau 1.2 démontre que les valeurs de PCI des carburants 1, 4 et 5 sont très similaires, ce qui pourrait expliquer le faible écart entre les températures de flamme de ces trois carburants.

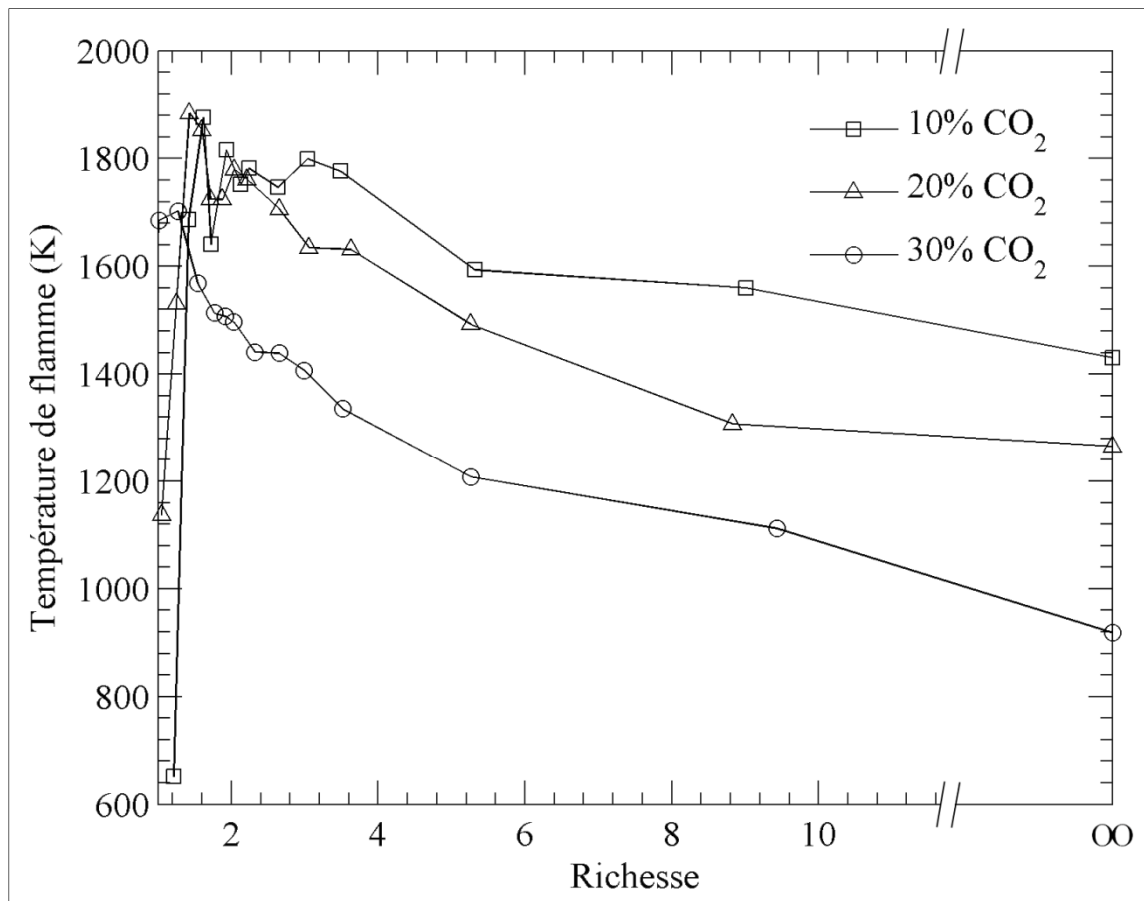


Figure 1.4 Influence de la quantité de CO₂ sur la température de flamme

Les températures maximales mesurées se comparent bien avec les températures de flamme adiabatiques, variant entre 2135 K pour le carburant 3 (30% CO₂) et 2330 K pour le carburant 2 (10% CO₂) tandis que pour les trois autres carburants, la température de flamme adiabatique est d'environ 2230 K. De plus, les mesures de température pour les flammes de diffusion concordent avec les résultats expérimentaux rapportés par Hariharan *et al.* (2007) qui indiquaient une température de flamme à mi-hauteur de 1320 K pour une flamme de diffusion d'hydrogène. Les différences avec les températures rapportées sur les Figures 1.4 et

1.5 pourraient s'expliquer par la présence de CO et de CO₂ dans les carburants de la présente étude.

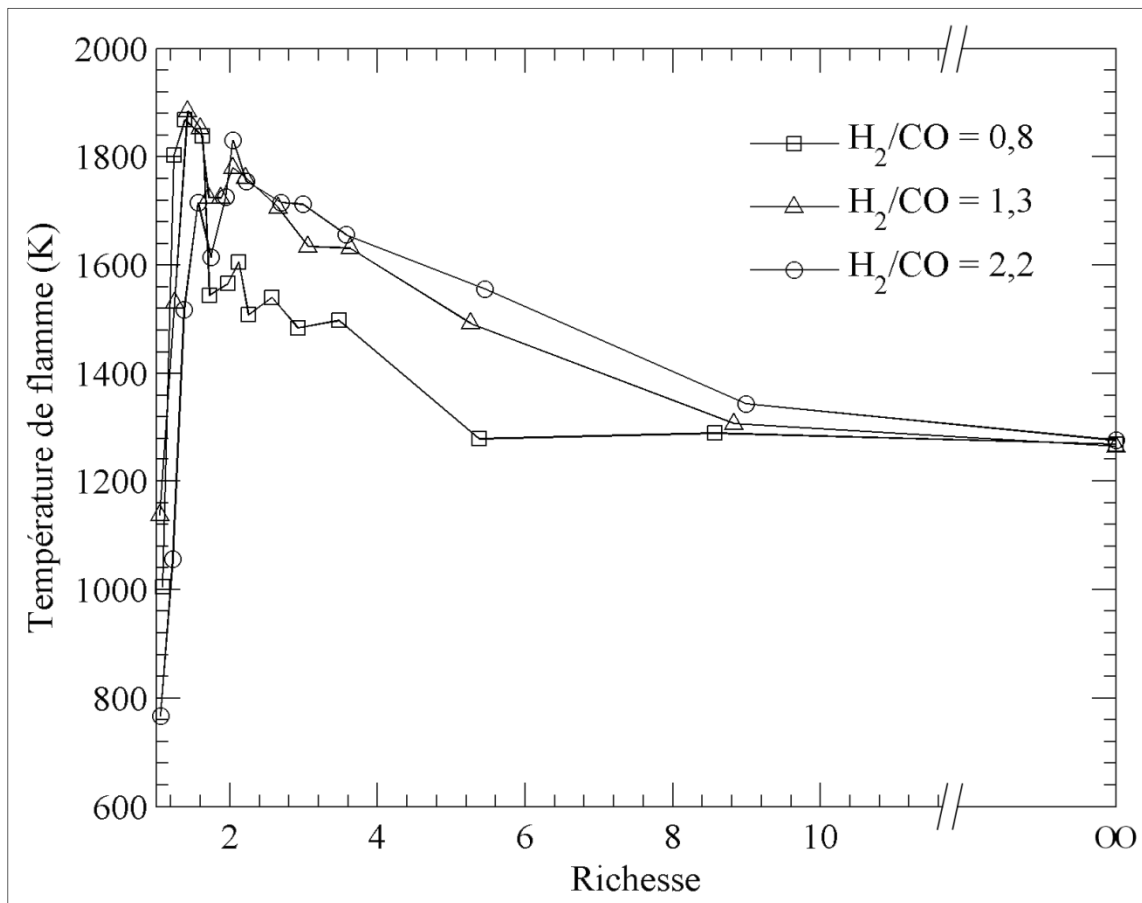


Figure 1.5 Influence du rapport H₂/CO sur la température de flamme

1.4.3 Apparence de la flamme

La Figure 1.6 présente des images de différents niveaux de prémélange pour le carburant 1 avec un ratio H₂/CO de 1,3 (45% H₂ / 35% CO / 20% CO₂). La première image à gauche montre la flamme de diffusion avec un nombre de Reynolds constant de 1400. La flamme bleue est droite et stable avec très peu d'oscillations.

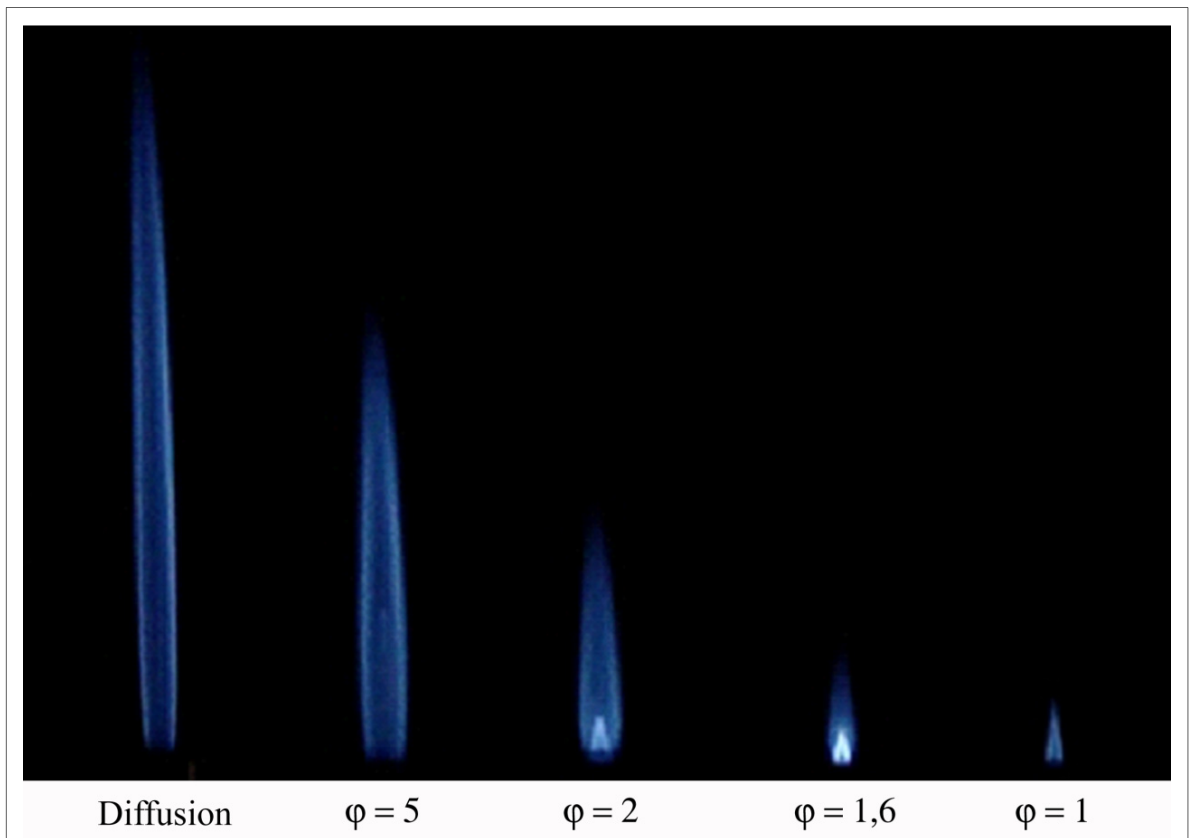


Figure 1.6 Images de flammes partiellement prémélangées pour un nombre de Reynolds constant de 1 400 (Carburant : 45% H₂/35% CO/20% CO₂)

La deuxième image à partir de la gauche est pour une richesse de 5,0. L'ajout d'une petite quantité d'air diminue grandement la hauteur visible de la flamme pour un nombre de Reynolds constant. De plus, la séparation entre la flamme prémélangée et la flamme de diffusion commence à apparaître. En effet, même si ce n'est pas clairement visible, un cône interne bleu pâle peut être aperçu environ au tiers de la hauteur de la flamme.

La troisième image à partir de la gauche illustre une flamme dont le niveau de prémélange partiel a été augmenté à une richesse de 2,0. La structure double de la flamme est clairement visible avec un cône intérieur grandement lumineux représentant la zone de la flamme prémélangée. La structure double de la flamme était clairement visible par observation directe à partir d'une richesse de 3,5.

À une richesse de 1,6 (quatrième image), l'émission visible de la flamme prémélangée est encore plus intense tandis que la flamme de diffusion est plus difficile à observer à cause de l'intensité lumineuse du cône interne. Finalement, avec l'atteinte de la stoechiométrie (dernière image de la Figure 1.6), la flamme est bleu pâle et très courte.

La Figure 1.7 illustre l'influence de la quantité de CO_2 dans le carburant pour une flamme de diffusion laminaire ayant un nombre de Reynolds constant de 1 400. Le carburant 2 (10% CO_2) présente une flamme bleu foncé près du brûleur avec un contour plus brillant. En se déplaçant vers l'extrémité de la flamme, celle-ci change lentement vers une couleur orange pâle. Ce changement de couleur peut indiquer une plus grande concentration de CO dégagée lors du processus de combustion causée par une température de flamme plus élevée entraînant une dissociation du CO_2 et, par le fait même, une augmentation du CO. Cette explication semble d'ailleurs être confirmée par la haute concentration de CO mesurée dans les produits de combustion de la flamme, soit un total d'environ 10,5% par volume. Cette température de flamme plus élevée est aussi responsable d'une augmentation de l'influence de la poussée d'Archimède, qui est observée par l'apparition d'une légère oscillation à l'extrémité supérieure de la flamme. Avec l'augmentation de la concentration de CO_2 de 10% (carburant 2) à 20% (carburant 1), la couleur de la flamme devient bleue uniformément et demeure bleue avec l'ajout supplémentaire de CO_2 . La quantité de CO mesurée pour le carburant 1 (20% CO_2) a diminué à 6% par volume et n'était pas détectée pour le carburant 3 (30% CO_2). De plus, l'addition de CO_2 stabilise l'extrémité de la flamme.

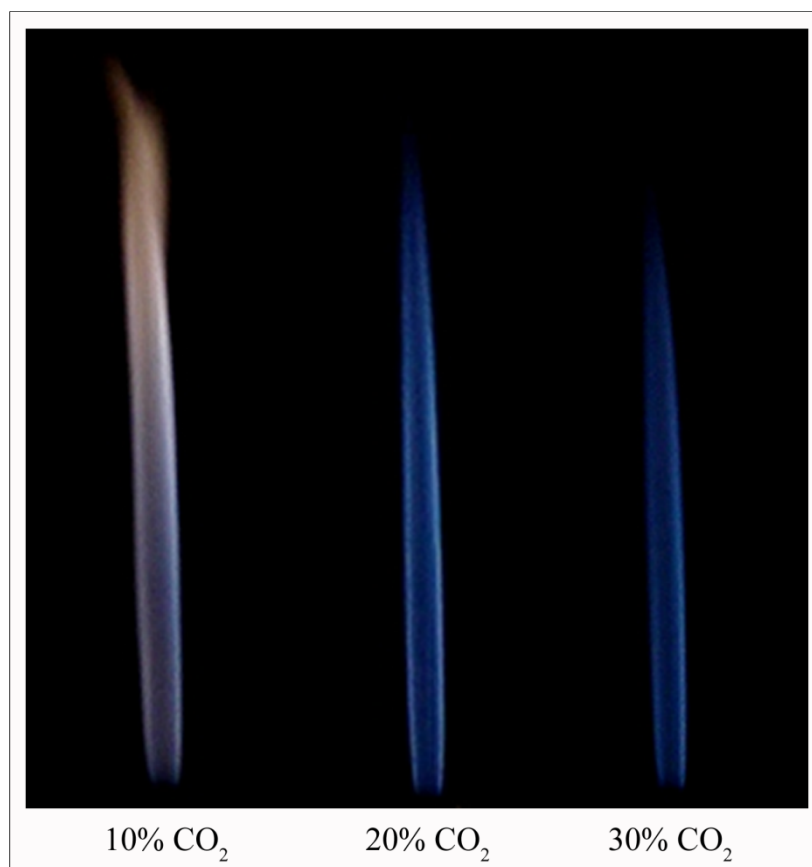


Figure 1.7 Influence de l'addition de CO_2 sur la flamme de diffusion

La Figure 1.8 présente l'effet du rapport H_2/CO sur l'apparence de la flamme de diffusion à une concentration de CO_2 constante. Lorsque le ratio est augmenté de 1,3 à 2,2, la flamme perd sa couleur bleue brillante et devient très pâle. En contraste, lorsque le ratio est diminué de 1,3 à 0,8, la flamme est plus foncée près du brûleur et devient orange vers l'extrémité supérieure de la flamme. La diminution du ratio H_2/CO tout en gardant la concentration de CO_2 constante rend aussi la flamme plus instable même si le nombre de Reynolds reste constant à 1 400. Encore une fois, l'apparition d'une pointe de flamme orange pourrait être associée à l'augmentation de la concentration de CO mesurée dans les produits de combustion au-dessus de la flamme. Ceci est ensuite associé avec une température de flamme plus élevée due à l'augmentation de la concentration d'hydrogène dans le carburant. Les concentrations de CO dans les produits de combustion des flammes de diffusion de la Figure 1.8 ont été mesurées et suivent l'addition d' H_2 dans les carburants. En effet, l'analyseur n'a

pas détecté de CO dans les produits de combustion pour le carburant 5 ($H_2/CO = 2,2$) tandis que 6,5% de CO par volume a été mesuré pour le carburant 4 ($H_2/CO = 0,8$).

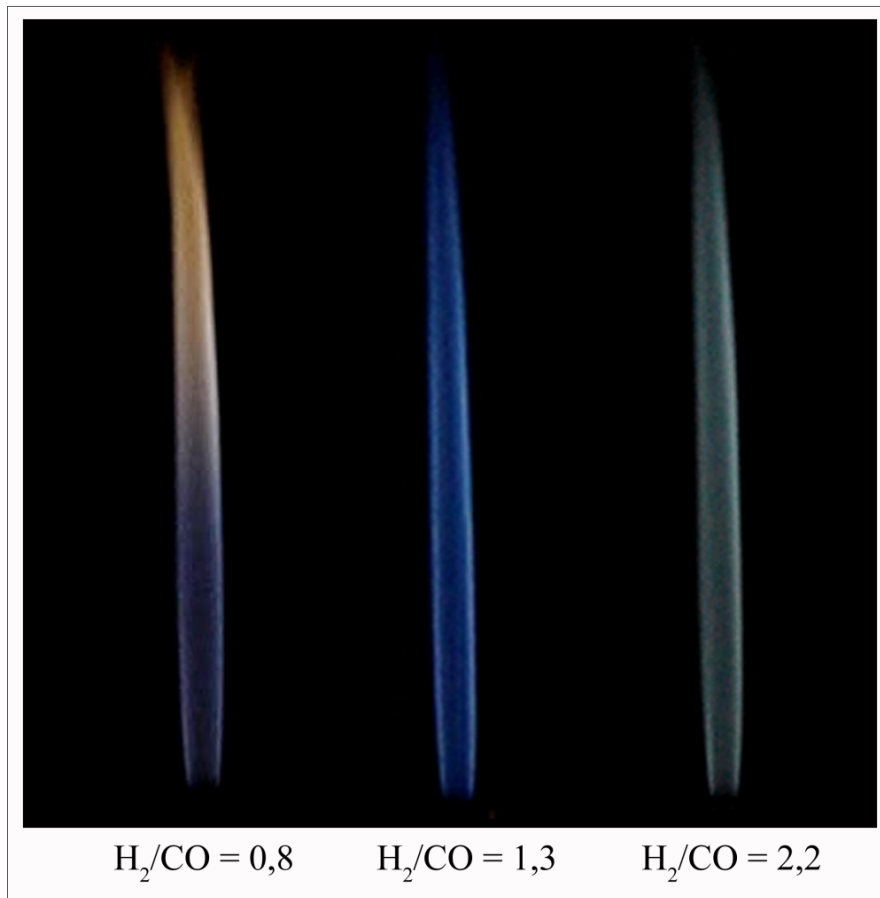


Figure 1.8 Influence du rapport H_2/CO sur la flamme de diffusion

1.4.4 Hauteur visible de flamme

Les Figures 1.9 et 1.10 présentent l'effet de la variation de la concentration de CO_2 et du rapport H_2/CO , respectivement, sur la hauteur visible de la flamme en fonction de la richesse du mélange. Pour tous les carburants à l'étude, la hauteur de flamme diminue progressivement lorsque le mélange approche la stoechiométrie. La hauteur de flamme ne varie pas en réponse à l'augmentation de la concentration de CO_2 ou du rapport H_2/CO pour une richesse inférieure à 3,0. Par contre, la hauteur de flamme est influencée par la composition du carburant pour une richesse supérieure à 3,0. La comparaison des Figures 1.9

et 1.10, pour des richesses supérieures à 3.0, révèle que l'effet du CO_2 est plus important sur la hauteur de flamme que celui du rapport H_2/CO . Dans le cas des flammes de diffusion, plus la concentration de CO_2 est faible, plus la hauteur de flamme est élevée puisque l'effet de la poussée d'Archimède est plus important lorsque la température de flamme augmente. Dans les résultats obtenus, l'influence du ratio H_2/CO est moins importante tel qu'observé sur la Figure 1.10. La tendance mesurée est toutefois très similaire à celle obtenue avec des flammes d'hydrogène/air (Hariharan, Periasamy et Gollahalli, 2007) ou des flammes de méthane/air (Gore et Zhan, 1996; Lyle *et al.*, 1999) pour des richesses inférieures à 3,5. Pour des richesses supérieures, le mélange méthane/air a démontré une hauteur de flamme constante.

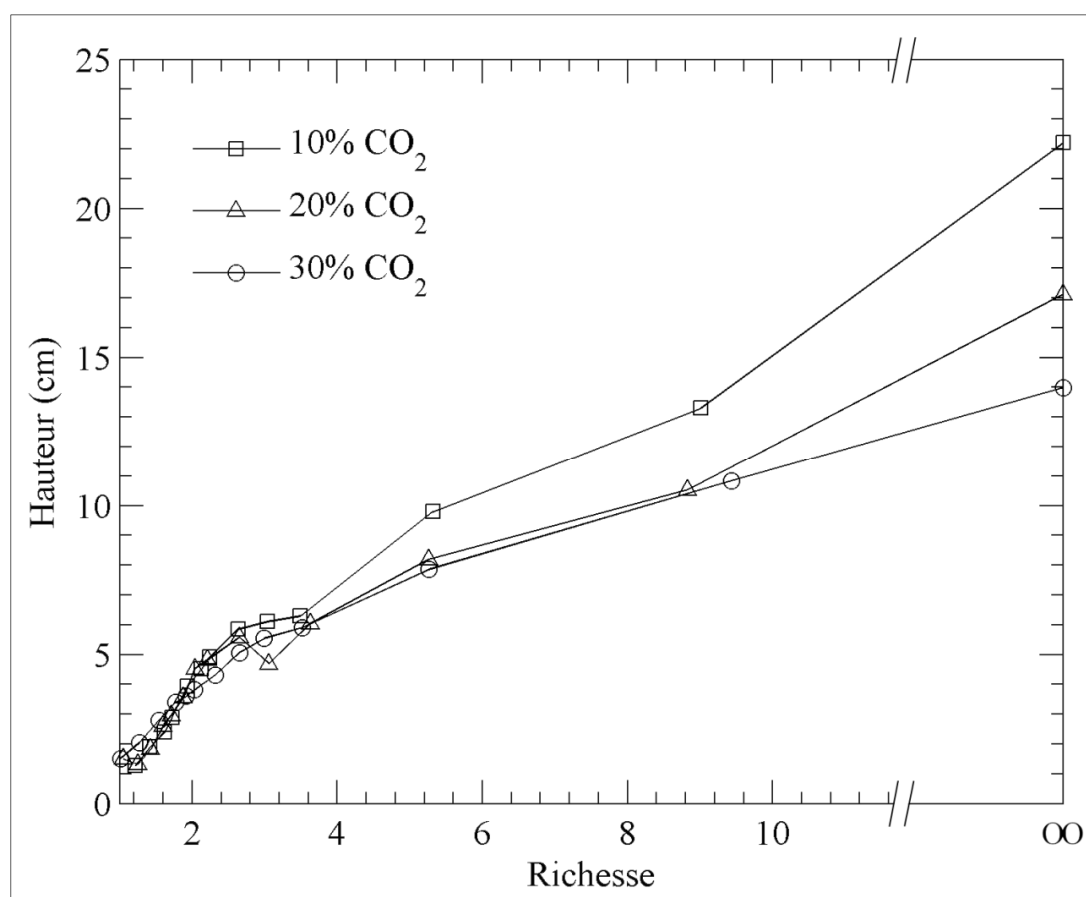


Figure 1.9 Influence de l'addition de CO_2 sur la hauteur de flamme

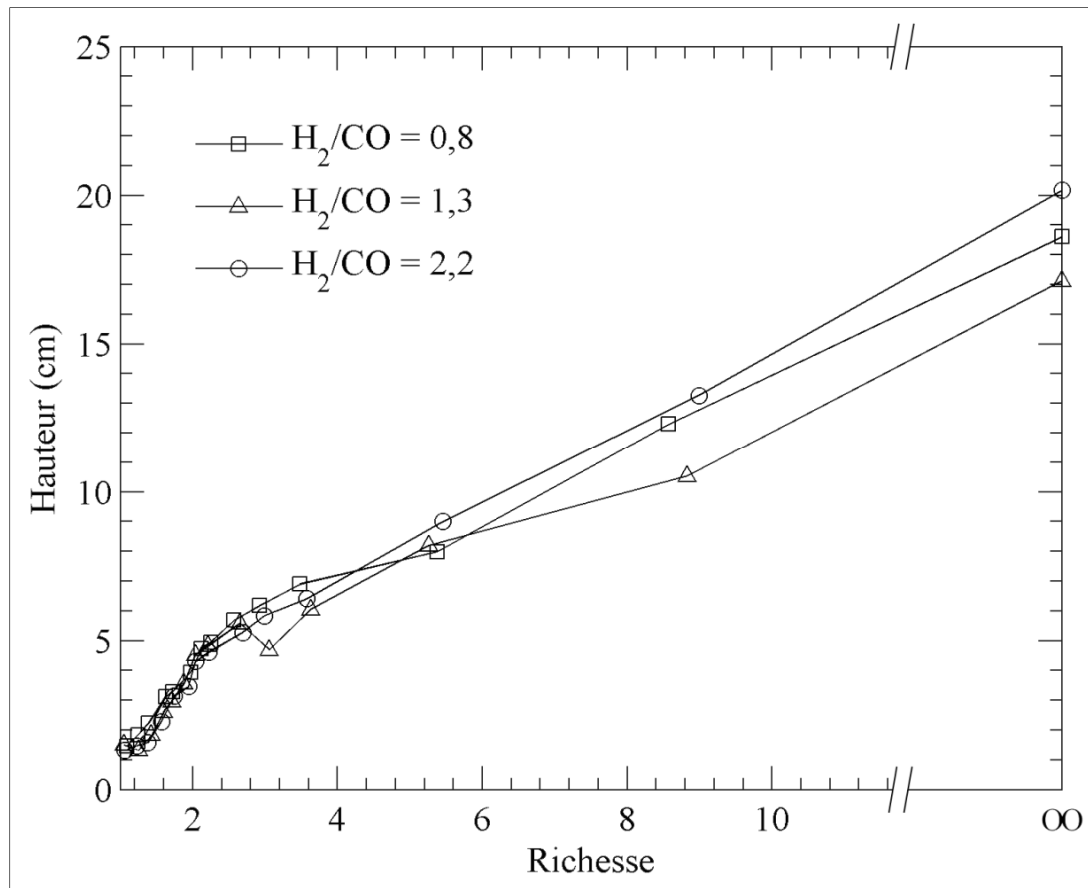


Figure 1.10 Influence du rapport H_2/CO sur la hauteur de flamme

1.4.5 Discussion des résultats

Pour les flammes de mélanges hydrocarbures/air, trois mécanismes dominants sont responsables de la formation des NO (Law, 2006; Lee, Oh et Kim, 2004; Nishioka *et al.*, 1994; Turns, 2000) :

- le mécanisme thermique (Zeldovich) avec les réactions :
 - $N_2 + O = NO + N$;
 - $O_2 + N = NO + O$;
 - $N + OH = NO + H$.
- le mécanisme prompt (Fenimore) avec les réactions :
 - $N_2 + CH = NCN + H$;
 - $N_2 + CH_2 = HCN + NH$;

- $\text{HCN} + \text{O} = \text{NCO} + \text{H};$
- $\text{HCN} + (\text{H}, \text{OH}) = \text{CN} + (\text{H}_2, \text{H}_2\text{O});$
- $\text{NCO} + \text{H} = \text{NH} + \text{CO};$
- $\text{NH} + (\text{H}, \text{OH}) = \text{N} + (\text{H}_2, \text{H}_2\text{O});$
- $\text{CN} + \text{O} = \text{N} + \text{CO};$
- $\text{O}_2 + \text{N} = \text{NO} + \text{O};$
- $\text{N} + \text{OH} = \text{NO} + \text{H}.$
- le mécanisme N_2O avec les réactions :
 - $\text{O} + \text{N}_2 + \text{M} = \text{N}_2\text{O} + \text{M};$
 - $\text{H} + \text{N}_2\text{O} = \text{NO} + \text{NH};$
 - $\text{O} + \text{N}_2\text{O} = \text{NO} + \text{NO}.$

Ce dernier mécanisme est d'ailleurs plus important pour les mélanges pauvres, soit pour une richesse inférieure à 0,8 (Turns, 2000), ce qui ne fait toutefois pas l'objet de la présente thèse. Comme présenté sur les Figures 1.2 et 1.3, les flammes des mélanges $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2$ produisent des tendances de EINO_x différentes de celles de flammes d'hydrocarbures pour des richesses supérieures à 2,0. En effet, les tendances présentées aux Figures 1.2 et 1.3 pour les gaz de synthèse sont très similaires à celles présentées par Lee *et al.* (2004) pour une flamme méthane/air si seulement les EINO_x thermiques sont considérés. L'indice d'émissions des NO_x prompts, qui est d'une grande importance pour les flammes d'hydrocarbures à des richesses supérieures à 2,0, est absent pour les gaz synthétiques tels que les mélanges $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2$ puisque le mécanisme est lié à la chimie de combustion des hydrocarbures (Turns, 2000). En effet, les NO_x prompts nécessitent la formation d'espèces précurseurs comme le HCN qui lui-même dépend de la présence de CH et CH_2 , espèces toutefois absentes dans la cinétique $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2$. Basée sur ces considérations, la conclusion est que le mécanisme thermique est responsable des émissions de NO_x pour les carburants synthétiques étudiés et que les émissions sont donc fonction de la température de flamme seulement. Les températures de flamme mesurées et présentées aux Figures 1.4 et 1.5 suivent d'ailleurs la même tendance que les EINO_x des Figures 1.2 et 1.3 puisque la température est le facteur principal guidant la formation des NO_x dans les flammes $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2$. Toutefois, la variation

de température n'explique pas le comportement non monotone des $EINO_x$ observés entre $\varphi = 1,6$ et $\varphi = 3,5$. Sur cette plage, Gore et Zhan (1996) ont rapporté que le comportement ne peut pas être expliqué par l'augmentation constante de la hauteur de flamme, qui a pour conséquence une augmentation du temps de résidence qui devrait augmenter monotonement les $EINO_x$, ni par la diminution de la température de flamme, qui devrait réduire les $EINO_x$. Le comportement non monotone des $EINO_x$ pour les flammes légèrement riches peut être lié aux réactions d'étagement (reburn) $NO + O + M \rightarrow NO_2 + M$ et $NO + H + M \rightarrow HNO + M$ basé sur les résultats de Som *et al.* (2008). Ces réactions sont de grandes consommatrices de NO dans les flammes riches de gaz de synthèse et permettraient une réduction de NO_x sur la plage de richesse $1,6 \leq \varphi \leq 3,5$.

Finalement, Shudo *et al.* (2008) ont comparé expérimentalement les émissions de NO_x de flammes d'hydrogène et de méthane. Ils ont conclu que l'hydrogène produit moins de NO_x que le méthane à cause des différences d'espèces impliquées dans les mécanismes thermique et prompt de la production des NO_x . Puisque l'hydrogène ne peut pas produire les radicaux CH et CH_2 nécessaires pour produire du HCN, qui est un précurseur à la formation des émissions de NO prompts, la différence de cinétique chimique de combustion expliquerait la plus faible production de NO_x des carburants $H_2/CO/CO_2$.

1.5 Conclusion

Pour conclure, l'objectif principal visé a été atteint puisque des résultats expérimentaux sur les indices d'émissions de NO_x , sur la température de flamme, sur l'apparence de la flamme et sur la hauteur de flamme visible ont été rapportés pour cinq carburants synthétiques différents. De plus, les effets de la variation du ratio H_2/CO ainsi que de la concentration de CO_2 ont été analysés sur une grande plage de richesses.

L'addition de CO_2 dans le carburant diminue la température ainsi que la hauteur de la flamme. En ce qui concerne l'apparence de la flamme, la flamme contenant seulement 10% de CO_2 était orange et est devenue bleue lorsque plus de CO_2 a été ajouté au carburant. Une

plus grande concentration de CO dans les produits de la combustion pourrait être la cause de la portion orange observée dans la flamme.

Les effets du ratio H_2/CO sur la température et sur la hauteur de la flamme étaient moins importants que les effets observés lors de l'ajout de CO_2 au carburant. Par contre, l'apparence de la flamme changeait avec la variation du ratio H_2/CO . En effet, la réduction du ratio a fait en sorte que la flamme bleue très brillante est devenue très pâle tandis que l'augmentation du ratio a produit une couleur orange sur la pointe de la flamme, qui pourrait aussi être expliquée par la présence plus élevée de CO dans les produits de combustion.

L'addition de CO_2 au carburant a diminué les $EINO_x$ sur toute la plage de richesses étudiée. Également, l'augmentation du ratio H_2/CO a diminué les $EINO_x$ pour les richesses inférieures à 2,0, mais n'a eu aucun effet pour les mélanges plus riches. En comparant avec les carburants d'hydrocarbures, les carburants synthétiques tels que ceux étudiés produisent moins de NO_x grâce à leurs températures de flamme plus basses, qui réduisent les NO_x thermiques, et à l'absence des espèces associées avec le mécanisme des NO_x prompts.

CHAPITRE 2

SPECTROSCOPIE

2.1 Introduction

À la suite de l'analyse des résultats de la section précédente, il a été conclu que l'ajout de CO_2 au carburant entraînait une diminution de la température de flamme, de la hauteur de flamme et de l'indice d'émissions des NO_x de même qu'une variation de la couleur de la flamme de l'orange vers le bleu. Toutefois, le CO_2 étant un diluant, il ne réagit pas avec l' H_2 et le CO et par conséquent, les effets obtenus resteront sensiblement les mêmes. Toutefois, une dissociation du CO_2 à haute température, qui entraînerait l'apparition des espèces réactives CO et O , pourrait être observée. D'autre part, il a été conclu que les émissions polluantes de NO_x sont très dépendantes de la température de la flamme. Donc, pour la suite de la thèse, une étude plus approfondie des espèces chimiques présentes dans la flamme et leur influence sur la température de flamme sera réalisée dans le but de mieux comprendre l'interaction entre les espèces chimiques considérées réactives. Conséquemment, les émissions de NO_x seront mises de côté pour le reste de la thèse afin de porter une attention plus particulière à la prédiction des espèces chimiques et de la température de flamme qui joueront un rôle primordial lors de l'utilisation de mécanismes prédisant la formation des NO_x . De plus, puisque l'effet du ratio H_2/CO reste encore peu étudié et que cet aspect suscite l'intérêt d'une recherche approfondie sur son influence, des carburants composés uniquement d' H_2 et de CO seront utilisés. Ce chapitre présente donc une étude sur les effets de la variation du ratio H_2/CO sur les espèces chimiques majeures présentes dans une flamme ainsi que sur la température de flamme et est divisé de la façon suivante : tout d'abord, une revue de la littérature résume les travaux d'autres chercheurs reliés au présent projet; deuxièmement, la méthodologie expérimentale utilisée, incluant une analyse d'incertitude des résultats, est décrite en détail; troisièmement, les résultats expérimentaux sont présentés et analysés; finalement, une conclusion résume les principaux points observés.

2.2 Revue de la littérature

À ce jour, aucune étude portant sur l'utilisation de techniques de diagnostic laser dans le but d'analyser la structure de flammes laminaires partiellement prémélangées de mélanges H_2/CO ne semble avoir été effectuée. Un spectromètre de masse et des thermocouples ont toutefois été utilisés afin d'étudier les espèces chimiques majeures et la température dans une flamme riche composée d' H_2 , de CO , de N_2O et d' Ar . Dans cette section, cette étude est présentée de même que les travaux portant sur la structure de flamme d'autres carburants, tels que les hydrocarbures (méthane et butane), l'hydrogène et le monoxyde de carbone.

2.2.1 Flammes d'hydrocarbures

Rabenstein et Leipertz (1998) ont effectué des mesures de spectroscopie Raman, une technique consistant à exciter des molécules avec un laser pour ensuite collecter l'énergie lumineuse émise à l'aide d'un détecteur, dans une flamme laminaire partiellement prémélangée d'un mélange riche ($\phi = 10$) méthane-air stabilisée sur un brûleur à double écoulement. Les profils radiaux pour les espèces principales (O_2 , N_2 , CO_2 , H_2O , CH_4 et H_2) et la température ont été obtenus à l'aide d'un laser Nd:YAG à triple fréquence utilisant une longueur d'onde de 355 nm et ce, pour cinq hauteurs différentes au-dessus de la sortie du brûleur. Leurs résultats ont démontré que la position de la zone de réaction chimique est représentée par une diminution des fractions molaires des gaz prémélangés, soit O_2 , N_2 et CH_4 , ainsi que par une augmentation des fractions molaires de CO_2 et H_2O , soit les principaux produits de la combustion. Ils ont aussi observé la diffusion de l'air ambiant dans la flamme par une augmentation de la concentration d' O_2 sur la périphérie de la flamme en fonction de la hauteur de mesure. Par contre, après une certaine hauteur, seulement des produits de combustion étaient mesurés, ce qui indique une combustion complète. La structure de flamme était caractérisée par un élargissement, par rapport à l'axe central, de la position radiale de la concentration maximale de CO_2 et d' H_2O lorsque la hauteur de mesure augmentait de la base de la flamme jusqu'à sa pointe. Une tendance semblable avait aussi été observée avec le profil de température.

Fernández *et al.* (2006) ont aussi utilisé la spectroscopie Raman pour mesurer la température et les espèces chimiques majeures (N_2 , O_2 , CH_4 , CO_2 et H_2O) dans une flamme laminaire prémélangée d'un mélange méthane-air pauvre ($\phi = 0,66$) stabilisée sur un brûleur commercial. Le laser utilisé est un laser Ar^+ avec une longueur d'onde de 514,5 nm. Même si leur objectif principal était d'illustrer la capacité de la spectroscopie Raman pour mesurer une moyenne temporelle des propriétés locales dans des flammes stationnaires peu lumineuses, les tendances mesurées pour la température et les espèces majeures se comparent bien avec celles de Rabenstein et Leipertz (1998). De plus, à partir des profils radiaux présentés, les valeurs maximales de CO_2 et d' H_2O semblaient coïncider avec la position radiale de la température maximale.

Datta *et al.* (2004) ont utilisé la spectroscopie de diffusion Raman anti-Stokes cohérente (*Coherent anti-Stokes Raman spectroscopy*, « CARS ») pour mesurer la température et les concentrations de CO dans une flamme partiellement prémélangée d'un mélange méthane-air riche stabilisée sur un brûleur à fentes Wolfhard-Parker. Cette technique est sensiblement la même que celle utilisée pour la spectroscopie Raman, sauf que deux lasers sont nécessaires et que plusieurs photons sont captés par la caméra au lieu d'un seul dans le but de mesurer la vibration des molécules, ce qui produit un signal dont les ondes sont cohérentes entre elles. Ceci a donc pour conséquence que l'intensité du signal est beaucoup plus grande avec le CARS qu'avec la spectroscopie Raman. Les mesures expérimentales ont été prises pour des richesses (ϕ) variant entre 1,7 et 4,0 ainsi que pour des hauteurs allant de 5 mm à 30 mm au-dessus du brûleur. À partir des résultats de températures, ils ont observé que l'augmentation de la richesse de 1,7 à 4,0 réduisait l'inclinaison des gradients de température. Ceci a donc entraîné une diminution du plateau de température maximale, ce qui signifie que la partie interne de la flamme est plus large. De plus, pour une même richesse, la température au centre de la flamme augmentait lorsque la hauteur de mesure augmentait jusqu'à l'atteinte d'une température maximale de 2000 K. Pour le CO sur l'axe central du brûleur, toujours avec une richesse constante, les concentrations mesurées augmentaient avec la hauteur de mesure, ce qui a aussi été reporté par Nguyen *et al.* (1996).

D'un autre côté, Gore et Zhan (1996) ont utilisé un système de chromatographie en phase gazeuse (CPG), une technique permettant de séparer les molécules d'un mélange très complexe, pour mesurer les concentrations des espèces chimiques majeures (CO_2 , CO , H_2 , O_2 , N_2 et CH_4) dans des flammes laminaires prémélangées méthane-air stabilisées sur un brûleur à double écoulement. Le ratio d'équivalence à l'intérieur du brûleur (ϕ_B) variait entre 1,4 et 19 tandis que le ratio d'équivalence total, incluant l'air provenant du double écoulement, était maintenu à 0,5. Ils ont observé que l'augmentation du prémélange entraînait une augmentation de la fraction molaire maximale de CO_2 et d' H_2O , ce qui indiquerait que les températures maximales augmenteraient aussi sous des conditions adiabatiques. Toutefois, la fraction molaire de CO est restée constante jusqu'à $\phi_B = 3,5$, mais la position radiale de la fraction molaire maximale s'est éloignée, vers le centre de la flamme, de la position radiale de la concentration maximale de CO_2 . Ceci indiquerait une structure double de la flamme avec une région incluant la combustion prémélangée du mélange air-carburant suivie d'une région de flamme de diffusion où le CO et l' H_2 restants sont consommés. Pour l'hydrogène, la concentration maximale a diminué légèrement jusqu'à un ϕ_B de 5 avant de se remettre à augmenter. Finalement, pour $\phi_B > 3,5$, la structure de flamme est similaire à celle de la flamme de diffusion tandis qu'une structure de flamme double est observée pour $\phi_B \leq 3,5$. La Figure 2.1 présente d'ailleurs cette variation de la structure de flamme. Pour la flamme de gauche, soit la flamme de diffusion, le carburant n'est pas prémélangé avec de l'air à sa sortie du brûleur donc il doit réagir avec l'air ambiant se diffusant dans le carburant. Pour ce type de flamme, on se retrouve d'ailleurs avec trois zones distinctes, soit une zone de réaction séparant une zone riche en carburant et une autre riche en oxydant (Law, 2006). Pour la flamme de droite, soit la flamme partiellement prémélangée, on observe l'apparition d'un cône lumineux à l'intérieur de la flamme de diffusion. Dans ce cône, le carburant réagit avec l' O_2 présent dans le mélange air-carburant. Par la suite, dans la région de la flamme de diffusion, le carburant n'ayant pas réagi dans le cône s'oxyde avec l' O_2 de l'air ambiant qui se diffuse dans la flamme.

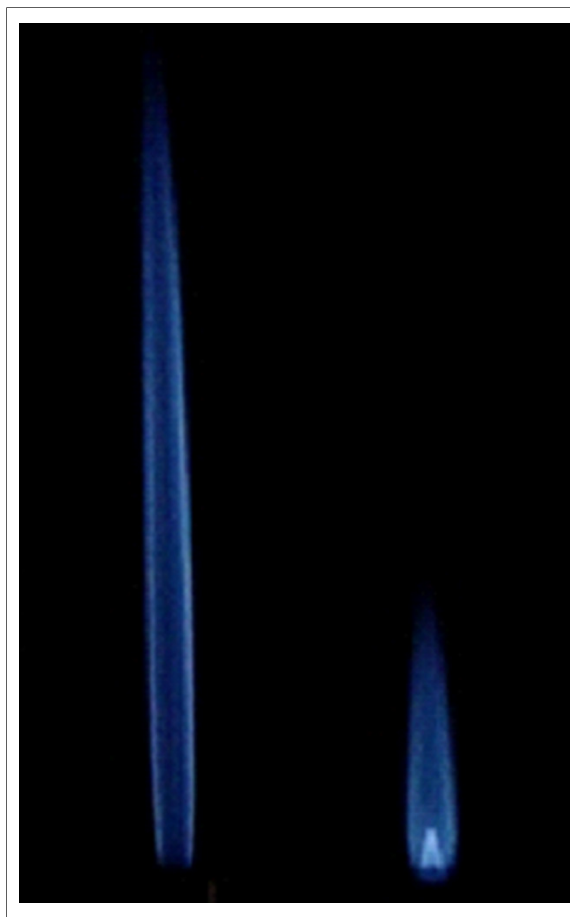


Figure 2.1 Flamme de diffusion (gauche)
et structure de flamme double (droite)

Mishra *et al.* (2006) ont aussi utilisé la CPG pour mesurer les concentrations de certaines espèces chimiques (O_2 , CO et CO_2) dans des flammes laminaires partiellement prémélangées d'un mélange méthane-air et propane-air stabilisées sur un brûleur à double écoulement. Pour les deux flammes et sous des conditions initiales similaires, ils ont observé que le CO était formé dans la partie interne de la flamme, ce qui avait aussi été rapporté par Nguyen *et al.* (1996). De plus, en se déplaçant sur l'axe central vers la pointe de la flamme, le CO se diffusait vers l'extérieur de la flamme où il réagirait avec le OH pour former du CO_2 . La délimitation de la zone interne et externe de la flamme pouvait être obtenue grâce à la variation de la concentration d' O_2 en fonction de la hauteur de mesure. En effet, à partir de la sortie du brûleur, l'oxygène diminuait jusqu'à une valeur minimale qui représentait la pointe de la zone interne de la flamme. Des mesures selon l'axe radial ont aussi été prises avec le

mélange propane-air à 15 mm au-dessus du brûleur. Mishra *et al.* (2006) ont observé que l'O₂ atteignait un minimum à la même distance radiale où le CO atteignait un maximum, ce qui représente la limite de la flamme interne. La concentration de CO diminuait rapidement par la suite pendant que le CO₂ augmentait pour atteindre une concentration maximale. La quantité d'O₂ commençait aussi à augmenter à partir de ce point.

Pour leur part, Bennet *et al.* (2000) ont présenté la distribution axiale de certaines espèces chimiques (CH₄, O₂, H₂O et CO₂) et de la température dans des flammes laminaires partiellement prémélangées d'un mélange méthane-air stabilisée sur un brûleur à double écoulement en utilisant un système de spectroscopie de masse et des thermocouples. Pour les profils de température, ils ont observé que la température maximale sur l'axe central du brûleur augmentait tandis que celle proche de la surface du brûleur diminuait lorsque le niveau de prémélange augmentait. Pour les profils d'H₂O et similairement pour ceux du CO₂, l'absence de ces espèces à la sortie du brûleur persistait plus longtemps avant d'augmenter plus rapidement avec l'augmentation du niveau de prémélange. Finalement, trois effets ont été observés sur les distributions d'O₂ lorsque le niveau de prémélange augmentait : premièrement, la concentration initiale d'O₂ à la sortie du brûleur augmentait; deuxièmement, la concentration initiale commençait à diminuer à une distance axiale plus élevée; troisièmement, l'O₂ disparaissait plus rapidement à 55% de la hauteur de flamme indiquant un front de flamme interne plus important.

Mokhov *et al.* (2007) ont rapporté des mesures Raman de température, de N₂, de C₂H₂ et de CO dans une flamme de diffusion laminaire axisymétrique d'un mélange méthane-air stabilisée sur un brûleur annulaire à double écoulement en utilisant un laser Nd:YLF avec une longueur d'onde de 528 nm. Les profils radiaux de température et de N₂ se comparaient bien avec ceux de Rabenstein et Leipertz (1998). Toutefois, au fur et à mesure que la hauteur de mesure augmentait, la concentration de CO au centre de la flamme augmentait tandis que la valeur maximale de CO selon l'axe radial diminuait et sa position radiale se déplaçait vers le centre du brûleur jusqu'à ce que la concentration de CO centrale corresponde à la

concentration maximale. Ceci est d'ailleurs dû aux forces ascensionnelles apparaissant avec l'augmentation de la température de flamme.

Ishizuka et Sakai (1988) ont rapporté des profils de concentrations d'espèces et de température dans une flamme de diffusion laminaire d'un mélange $H_2/CH_4/N_2$ stabilisée sur un brûleur Bunsen en utilisant la CPG. Les observations concernant les distributions du CO , de l' H_2O et du CO_2 étaient comparables aux résultats d'autres chercheurs (Levy et Kartvelishvili, 2006; Mishra, Datta et Mukhopadhyay, 2006; Mokhov *et al.*, 2007). De plus, en comparant les ratios de fraction massique H_2/CH_4 le long de l'axe central de la flamme, ils ont observé qu'ils diminuaient lorsque la hauteur augmentait, ce qui indique l'importance de la diffusivité de l'hydrogène comparativement à celle du méthane.

Levy et Kartvelishvili (2006) ont présenté un nouveau système de diagnostics utilisant la spectroscopie UV Raman et ont mesuré des concentrations relatives d' O_2 , de N_2 , de CO , de CO_2 , d' H_2 , d' H_2O et de carburant imbrûlé ainsi que des températures de flamme. Ils ont utilisé un laser Nd:YAG avec une longueur d'onde de 266 nm concentré sur une flamme partiellement prémélangée d'un mélange butane-air stabilisée sur un brûleur Bunsen. Les fractions molaires des espèces majeures ont été obtenues sur l'axe radial à une hauteur de 45 mm au-dessus du brûleur. Ils ont observé que la position radiale de la concentration maximale de CO_2 correspondait avec la région de température maximale et de concentration d'oxygène minimale, ce qui avait aussi été rapporté par Rabenstein et Leipertz (1998).

2.2.2 Flammes d'hydrogène

Aeschliman *et al.* (1979) ont utilisé la spectroscopie instantanée de Raman pour mesurer les concentrations de certaines espèces chimiques (H_2 , O_2 et N_2) et les températures dans une flamme de diffusion laminaire d'hydrogène stabilisée sur un conduit vertical d'acier inoxydable. Pour une hauteur donnée, ils ont observé que le croisement radial des concentrations d' O_2 et de H_2 correspondait à la même position radiale que la température maximale mesurée, ce qui indiquerait la position du front de flamme. De plus, selon leurs

résultats, lorsque la hauteur de mesure était augmentée, la température de flamme centrale augmentait tandis que la température maximale restait la même et sa position radiale se déplaçait vers le centre du brûleur.

Toro *et al.* (2005) ont rapporté une comparaison entre des mesures expérimentales et numériques de températures et de distributions des espèces majeures pour des flammes de diffusion laminaires d'hydrogène en utilisant un brûleur annulaire à double écoulement. Le carburant était dilué avec de l'azote (1:1) et trois vitesses de sortie du carburant différentes ont été étudiées (18, 27 et 50 cm/s). Des concentrations de spectroscopie Raman pour l'O₂, le N₂, l'H₂O et l'H₂ ont été obtenues en utilisant un laser Nd:YAG avec une longueur d'onde de 532 nm. Cheng *et al.* (2006) ont aussi présenté des résultats expérimentaux et numériques détaillés de la température, des concentrations des espèces majeures (O₂, N₂, H₂O et H₂) et de la concentration du radical OH pour des flammes de diffusion laminaires d'un jet d'hydrogène ($Re = 30$ et 330). Les flammes étaient stabilisées sur un tube vertical droit d'acier inoxydable et des techniques de spectroscopie UV Raman ainsi qu'une technique de fluorescence prédissociative induite par laser ont été utilisées dans le but d'obtenir les données expérimentales. Pour les profils radiaux, Toro *et al.* (2005) ont observé que la valeur maximale du profil de température ainsi que celle du profil d'H₂O correspondaient. De leur côté, Cheng *et al.* (2006) ont observé que la température maximale correspondait plutôt à la valeur maximale d'OH et que cela coïncidait avec le contour stoechiométrique de la flamme, soit à l'intersection des profils d'H₂ et d'O₂. Pour ce qui est de la concentration maximale d'H₂O, Cheng *et al.* (2006) ont rapporté qu'elle correspondait plutôt au point de consommation complète du carburant. Les profils radiaux de la température de flamme et des espèces chimiques mesurées à une hauteur de 5 mm par Cheng *et al.* (2006) sont d'ailleurs présentés à la Figure 2.2. Même si ce n'était pas mentionné par Toro *et al.* (2005), la correspondance entre la concentration maximale d'H₂O et la consommation complète de l'hydrogène pouvait également être observée dans leurs résultats expérimentaux. Finalement, en normalisant les profils axiaux par la vitesse de sortie du jet, ce qui donne un temps de résidence caractéristique, Toro *et al.* (2005) ont observé que les mesures de températures ainsi que celles des fractions molaires des espèces majeures se confondent en une seule

courbe. Ils ont donc conclu que la vitesse de sortie est un facteur important et que plusieurs vitesses de sortie devraient être étudiées, au moins pour les profils axiaux au centre du brûleur.

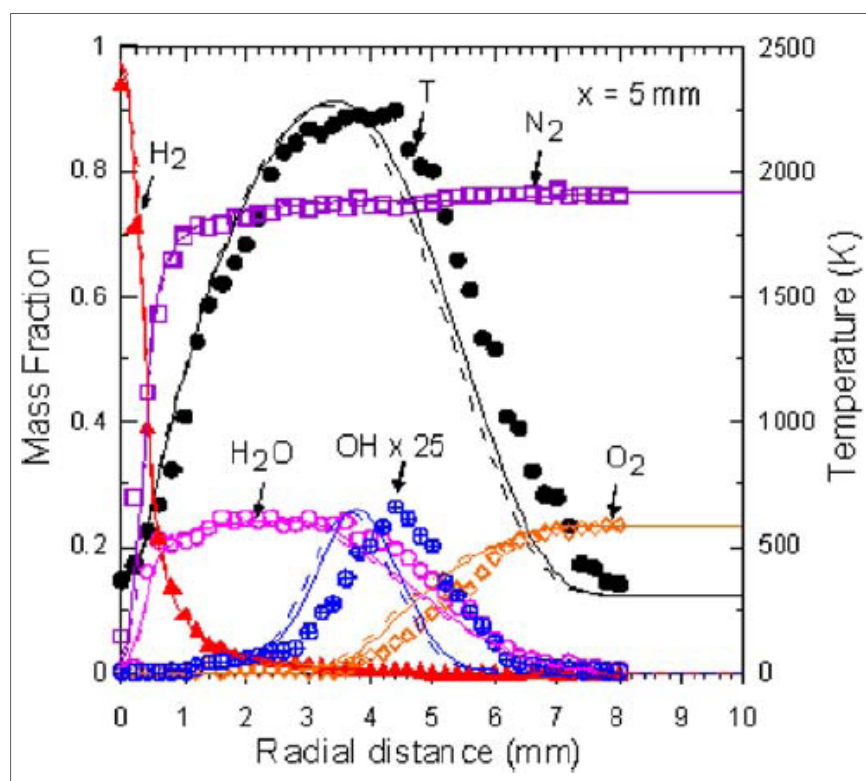


Figure 2.2 Profils radiaux de la température de flamme et des espèces chimiques mesurées à une hauteur de 5 mm pour une flamme de diffusion d'hydrogène ($Re = 330$). Les symboles représentent les résultats expérimentaux et les lignes représentent les résultats obtenus numériquement
Tirée de Cheng *et al.* (2006, p.275)

2.2.3 Flammes de monoxyde de carbone

Vestin et Bengtsson (2009) ont utilisé une variation de la spectroscopie Raman, soit la technique CARS, pour réaliser des mesures de température et de concentrations de N_2 , O_2 , CO et CO_2 dans une flamme de diffusion laminaire d'un mélange CO -air stabilisée sur un brûleur à fentes (Wolfhard-Parker). Un profil radial à 9 mm au-dessus du brûleur indiquait

que la concentration maximale de CO était présente au centre du brûleur où la température était minimale. À la frontière de la flamme, la concentration de CO₂ et la température de flamme étaient maximales tandis que les concentrations d'O₂ et de CO étaient à une valeur minimale, ce qui a permis de conclure que la concentration maximale de CO₂ ainsi que la consommation complète du CO étaient atteintes à la même position radiale dans la flamme.

2.2.4 Flammes de mélanges H₂/CO

Vandooren *et al.* (1997) ont utilisé la spectroscopie de masse et des thermocouples pour comparer expérimentalement et numériquement des résultats de températures axiales et d'espèces chimiques majeures (H₂, H₂O, CO, CO₂, O₂ et N₂) dans une flamme prémélangée d'un mélange H₂/CO/N₂O/Ar-air stabilisée sur un brûleur de type Spalding-Botha. Ce type de brûleur possède une sortie circulaire recouverte d'une plaque perforée, ce qui permet d'obtenir une flamme plate. Selon leurs résultats, la fraction molaire de CO₂ présentait une valeur maximale à la même hauteur où le CO était minimum. La même observation a été faite lors de la comparaison du profil d'H₂O à celui d'H₂.

2.2.5 Conclusion

En somme, la position radiale de la température maximale coïncidait avec les valeurs maximales de l'H₂O et du CO₂ et leurs profils étaient très similaires. La température de flamme était également liée à la consommation complète du carburant ainsi qu'au contour stoechiométrique de la flamme. De plus, avec l'augmentation de la hauteur de mesure, la concentration d'O₂ sur le contour de la flamme augmentait en raison de la diffusion de l'air ambiant dans la flamme et la zone de concentration maximale des produits de la combustion s'élargissait. Toutefois, cette revue de littérature illustre le manque de données expérimentales sur la structure de flamme de mélanges H₂/CO, soit au niveau des espèces chimiques principales (H₂, CO, H₂O, CO₂, O₂ et N₂) et de la température de flamme.

L'objectif principal est donc d'obtenir les concentrations des espèces chimiques principales (H_2 , CO, H_2O , CO_2 , O_2 et N_2) et la température de flamme pour différents mélanges H_2/CO à l'aide d'une méthode de diagnostic laser. Afin d'atteindre cet objectif, les sous-objectifs suivants sont définis :

1. Observer l'effet de la richesse sur la structure d'une flamme d'hydrogène;
2. Observer l'effet de la variation du ratio H_2/CO sur la structure de flamme d'une flamme partiellement prémélangée.

L'originalité de la présente section relève du fait qu'aucune donnée expérimentale sur la variation des espèces chimiques principales et de la température n'a été rapportée pour différents mélanges H_2/CO . De plus, pour la flamme d'hydrogène, seulement la température de flamme et les espèces chimiques présentes dans une flamme de diffusion ont été étudiées et aucune étude n'a été effectuée pour une flamme partiellement prémélangée. Également, les carburants utilisés permettent de bien comprendre les effets de la variation du ratio H_2/CO sur l'interaction des espèces présentes. Finalement, cette caractérisation permettra par la suite de valider des cinétiques chimiques de combustion couplées à des simulations numériques dans le but d'obtenir un outil de conception plus représentatif de la réalité.

2.3 Méthodologie expérimentale

Cette section présente la démarche expérimentale utilisée. Tout d'abord, les carburants utilisés sont brièvement présentés suivi d'une description détaillée des deux montages expérimentaux. Finalement, un résumé des conditions d'opération ainsi qu'une analyse d'incertitude complètent cette section.

2.3.1 Détermination des carburants

Dans la littérature, les carburants utilisés ont souvent les compositions suivantes : 95% H_2 / 5% CO, 50% H_2 / 50% CO et 5% H_2 / 95% CO. Dans notre cas, ces carburants ont également été utilisés sauf pour ce qui est du premier carburant qui était composé d' H_2 seulement dans

le but de comparer les résultats obtenus avec ceux de la littérature et ainsi valider la méthodologie expérimentale. Ces trois carburants permettent donc de couvrir la plus grande plage possible de rapports H_2/CO . De plus, les carburants intermédiaires suivants ont aussi été étudiés : 75% H_2 / 25% CO et 25% H_2 / 75% CO. Le Tableau 2.1 regroupe les différents carburants étudiés ainsi que les PCI respectifs.

Tableau 2.1 Carburants de l'étude

Carburant	H_2 (%)	CO (%)	Ratio H_2/CO	PCI (kJ/kg de carburant)
1	100	0	Infini	120 910
2	75	25	3	38 787
3	50	50	1	23 855
4	25	75	0,33	17 593
5	5	95	0,05	14 708

2.3.2 Montage expérimental (espèces chimiques)

La Figure 2.3 représente le schéma optique du système utilisé lors des expériences. Le laser Nd:YAG (Spectra-Physics), qui avait une fréquence de 10 Hz, produisait un faisceau d'une longueur d'onde de 1064 nm et la lumière UV, émise à une longueur d'onde de 266 nm, était générée par la quatrième harmonique. Le faisceau lumineux passait ensuite dans un obturateur électronique (LaVision) permettant d'empêcher le faisceau de passer lorsqu'aucune mesure n'était effectuée. Par la suite, un polariseur (LaVision) était installé permettant ainsi de faire varier la position angulaire des lames afin d'obtenir la polarisation P, qui donne l'intensité la plus faible, ou S, qui donne l'intensité la plus élevée, du laser (*Voir* Section 2.3.2.1 pour plus de détails). À la sortie du polariseur, deux miroirs permettaient de dévier le faisceau lumineux, qui avait un diamètre de 10 mm, dans le but d'augmenter la hauteur de la trajectoire du laser. Le faisceau était ensuite concentré en un point

perpendiculaire à l'axe central du brûleur avec une lentille sphérique ayant un diamètre de 50,8 mm et une distance focale de 500 mm.

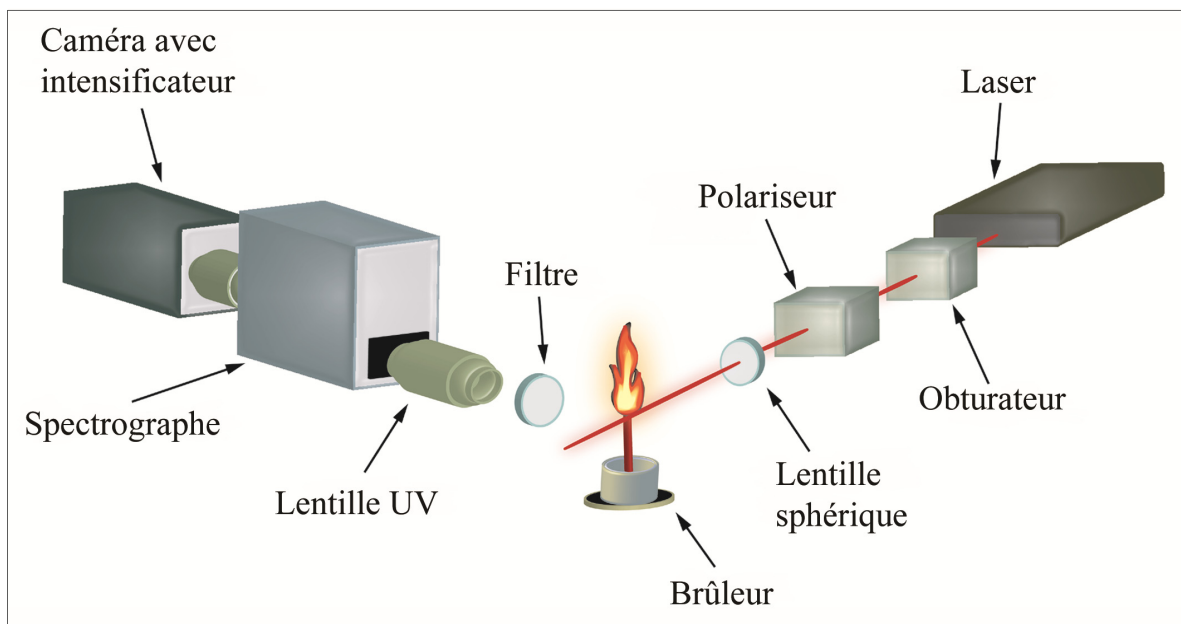


Figure 2.3 Montage expérimental du système laser

Le brûleur pour la présente partie était le même que celui utilisé pour la première partie expérimentale. Par contre, les carburants étudiés n'étaient pas préfabriqués donc l' H_2 , le CO ainsi que l'air étaient entreposés séparément dans des bouteilles à haute pression. De plus, dans le but d'automatiser le contrôle des débits, de nouveaux débitmètres (Omega FMA5423 avec une incertitude de 1,6% à pleine échelle) ont été utilisés et ceux-ci étaient contrôlés à l'aide d'un programme LabVIEW. Le brûleur était également positionné sur une tablette glissant verticalement sur un poteau fixé à la table optique permettant ainsi de balayer l'axe vertical, z , de la flamme. Les mesures de spectroscopie ont d'ailleurs été prises à des valeurs de z/H_T , où H_T est la hauteur visible moyenne de la flamme, égales à 10%, 20%, 40% et 80%. Le Tableau 2.2 regroupe les hauteurs moyennes pour les huit flammes étudiées.

Lorsque le laser entre en contact avec les atomes ou molécules présents dans la flamme, les électrons d'une couche interne se déplacent d'un niveau fondamental d'énergie vers un niveau d'énergie supérieur, communément appelé le niveau d'état excité. Par la suite, lorsque

l'électron revient à un niveau d'énergie fondamental, l'énergie perdue est émise sous forme lumineuse (photon). L'énergie lumineuse émise par la flamme, communément appelée signal Raman, est ensuite collectée par des lentilles qui concentrent la lumière dans la fente d'entrée du spectrographe (Acton Research SpectraPro 2300i), qui disperse par la suite la radiation incohérente sur une grille holographique ayant une résolution de 1200 fentes/mm. Le spectrographe est centré à une longueur d'onde de 280 nm, ce qui donne la possibilité de mesurer simultanément les espèces suivantes : O₂, N₂, H₂, H₂O, CO et CO₂. Un filtre était de plus installé en avant des lentilles afin d'éliminer le signal Rayleigh, soit la diffusion de la lumière par les particules étant beaucoup plus petites que la longueur d'onde de la lumière, dont l'intensité est beaucoup plus grande que celle du signal Raman. À la sortie du spectrographe, une caméra à dispositif à transfert de charge (LaVision, 1 376 x 1 040 pixels, taille du pixel : 6,45 μ m x 6,45 μ m) était installée et couplée à un intensificateur de signal.

Tableau 2.2 Hauteurs visibles moyennes des flammes à l'étude

Richesse	Carburant	H_T (cm)	Écart-type (cm)
Diffusion	1	32,58	1,29
$\phi = 12$	1	21,04	0,80
$\phi = 6$	1	13,04	0,72
$\phi = 3$	1	8,96	0,56
$\phi = 3$	2	6,03	0,24
$\phi = 3$	3	6,37	0,14
$\phi = 3$	4	6,40	0,17
$\phi = 3$	5	5,84	0,31

Pour chaque point de mesure et pour chaque degré de polarisation, 700 images étaient acquises à une fréquence de 10 Hz. L'image moyennée obtenue sous la polarisation P était ensuite soustraite de l'image moyennée obtenue avec la polarisation S. De plus, dans le but d'augmenter le rapport signal sur bruit, les pixels ont été regroupés par quatre selon l'axe

vertical. Cette technique est aussi utilisée par Rabenstein et Leipertz (1998), Toro *et al.* (2005) et Mokhov *et al.* (2007).

Finalement, le post-traitement des signaux Raman capturés par la caméra à dispositif à transfert de charge a été effectué à l'aide du logiciel Davis 7.2 (LaVision, 2007) de LaVision. Pour calibrer les différentes espèces, un débit à température et pression ambiante d'un carburant ayant des concentrations connues d'H₂, O₂, N₂, CO et CO₂ a été utilisé dans un brûleur de 30 mm de diamètre. À la température de la pièce, l'écart-type relatif pour les concentrations d'H₂ et d'O₂ était de 1% tandis qu'il était de 2% pour les concentrations de CO, CO₂ et N₂. À la température de la flamme, l'écart-type relatif maximal était de 5% pour les mesures de concentration d'H₂ et d'O₂, de 8% pour le CO, H₂O et CO₂ et de 16% pour le N₂. L'ordre de grandeur des écarts-types relatifs obtenus était semblable à celui de Cheng *et al.* (2006).

2.3.2.1 Détermination des angles de polarisation

Lorsqu'une molécule est excitée par un laser, l'intensité lumineuse émise par les photons et captée par le spectrographe possède deux directions, c'est-à-dire qu'elle se déplace verticalement ou horizontalement par rapport au plan de diffusion. L'intensité de la lumière diffuse est maximale lorsqu'elle est perpendiculaire au plan de diffusion, ce qu'on appelle la polarisation S, et minimale lorsqu'elle est parallèle au plan, ce qu'on appelle la polarisation P (*Voir Figure 2.4*).

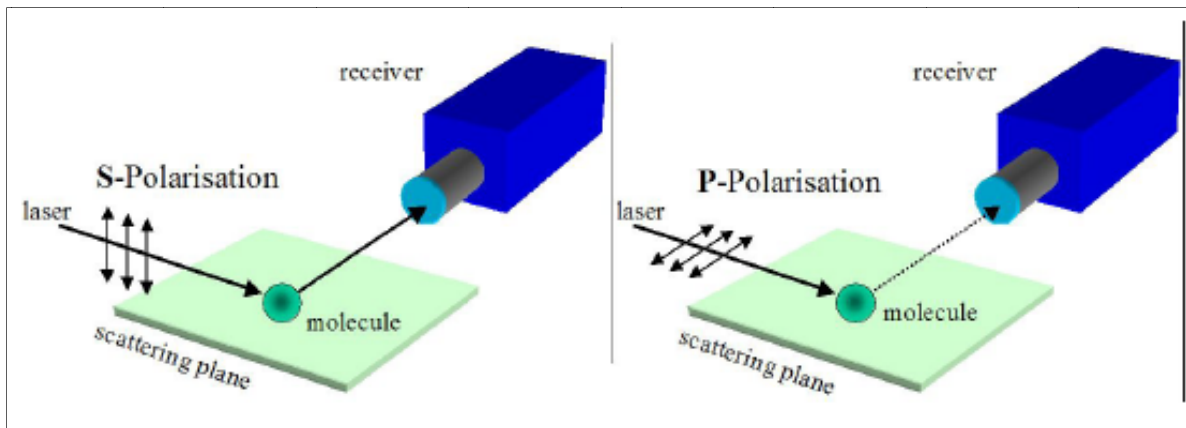


Figure 2.4 Caractéristique dipôle de la diffusion Raman de la lumière
Tirée de LaVision GmbH (2008, p. 20)

Une technique couramment utilisée pour obtenir le spectre de Raman, qui sera ensuite employé pour calculer les concentrations des espèces chimiques, consiste d'ailleurs à séparer la diffusion Raman, obtenue selon la polarisation S, et le bruit des émissions d'arrière-plan, obtenu selon la polarisation P (Hayashida *et al.*, 2006). Cette méthode entraîne donc l'utilisation d'un polariseur qui permet de polariser le faisceau lumineux du laser selon l'angle désiré tel que présenté sur la Figure 2.5.

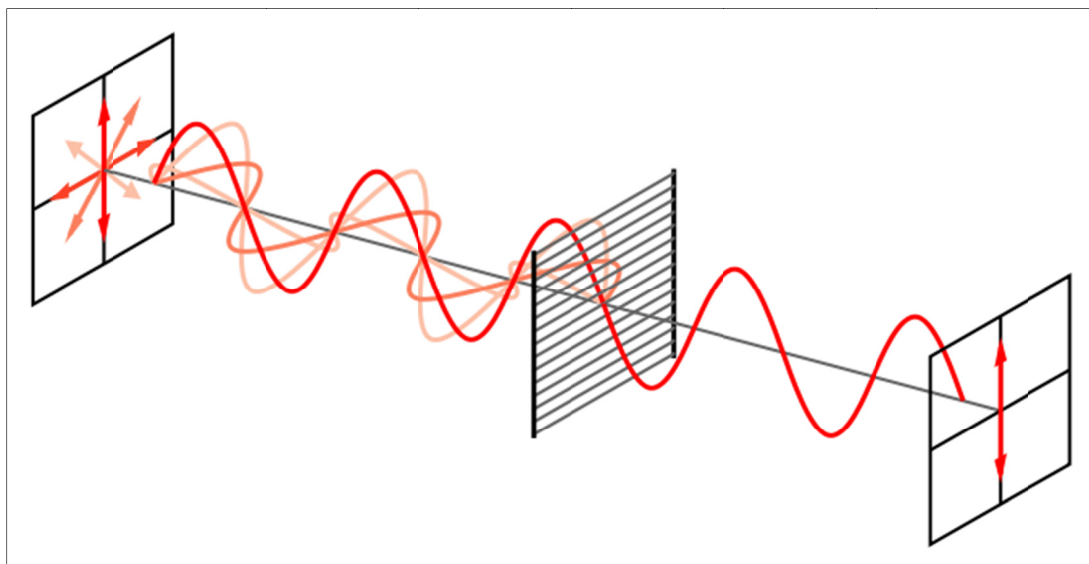


Figure 2.5 Polarisation du faisceau laser
Tirée de Mellish (2006, 21 avril)

Pour déterminer les angles de polarisation S et P à utiliser, il faut donc commencer par exécuter un balayage entre 0 et 360 degrés par intervalles de 10 degrés afin de retrouver l'intensité la plus faible et la plus forte du signal. La Figure 2.6 présente la variation de l'intensité du signal obtenue lorsque le laser passait dans l'air ambiant. Selon les résultats obtenus et sachant que l'angle de polarisation S est perpendiculaire à l'angle P, l'angle S choisi était de 250 degrés et l'angle P de 160 degrés.

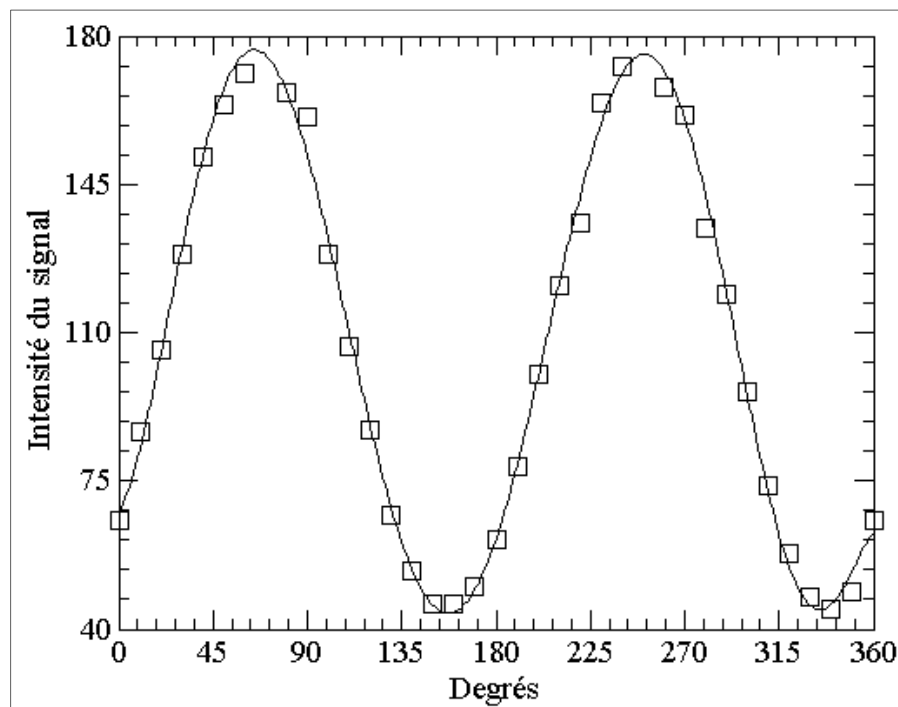


Figure 2.6 Variation de l'intensité du signal en fonction du degré de polarisation

2.3.2.2 Analyse de sensibilité

Une analyse de sensibilité a aussi été effectuée dans le but de valider le nombre d'images à enregistrer lors de la prise de mesure ainsi que la résolution de la distance entre les points selon l'axe radial.

Tout d'abord, pour valider le nombre d'images, les concentrations du carburant de référence (39,5% N_2 , 10,5% O_2 , 20% H_2 , 15% CO et 15% CO_2) ont été analysées à une hauteur approximative de 5 mm par rapport à la sortie du brûleur ayant un diamètre de 30 mm. La première étape a donc été de fixer la distance entre les points de mesure à une valeur de 1 mm et de prendre des mesures en faisant varier le nombre d'images acquises de 100 à 700 images. La Figure 2.7a présente la variation de la valeur moyennée obtenue pour les différentes espèces en fonction du nombre d'images. Il est possible de remarquer que les valeurs se stabilisent à partir de 500 images, ce qui indique que l'acquisition de ce nombre d'images serait suffisante.

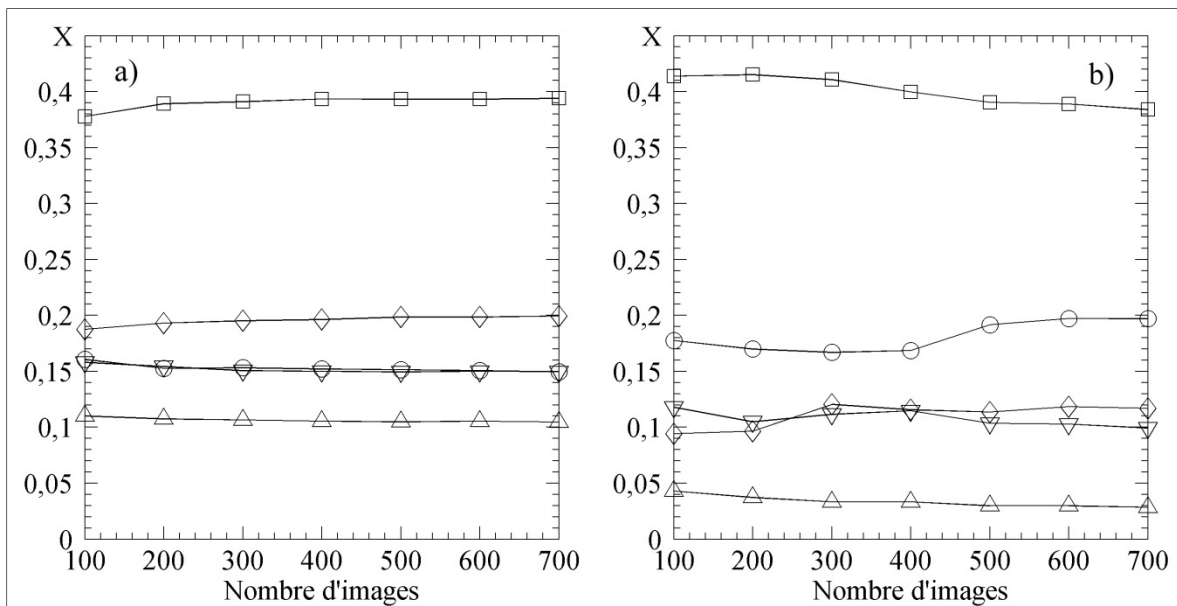


Figure 2.7 Variation des espèces mesurées (□ = N_2 , Δ = O_2 , ○ = CO , ◇ = H_2 , ▽ = CO_2) selon le nombre d'images d'acquisition : a) sans flamme et b) avec flamme

Par la suite, 700 images ont été acquises à une hauteur correspondant à 20% de la hauteur visible de la flamme, soit 12 mm, d'un carburant composé de 50% H_2 et 50% CO avec une richesse de 3 dans le but de vérifier si le nombre d'images d'acquisition fixé à 500 serait suffisant. Sur la Figure 2.7b, les résultats au centre du brûleur sont présentés en fonction du nombre d'images. Pour ce cas, on peut observer que c'est plutôt à partir de 600 images que la concentration des espèces chimiques ne varie presque plus. Donc, pour s'assurer que la

variation reste minime, il a été déterminé d'acquérir 700 images. En regardant dans la littérature, le nombre d'images accumulées semble varier selon le système utilisé (nombre de lasers, type de laser, intensité du laser, etc.) : Cheng *et al.* (2006) ainsi que Nguyen *et al.* (1996) moyennent 200 images, Vestin et Bengtsson (2009) mentionnent l'accumulation de plus de 200 images tandis que Levy et Kartvelishvili (2006) acquièrent 600 images. L'acquisition de 700 images à l'aide du montage expérimental utilisé est donc comparable à ce qui est présenté dans la littérature puisqu'on se retrouve dans le même ordre de grandeur.

La deuxième étape consiste à évaluer la distance entre les points selon l'axe radial, en gardant le nombre d'images constant à 700, afin d'obtenir des courbes lisses et éviter les variations statiques des valeurs. Pour cette étape, la mesure a également été prise à une hauteur de 12 mm dans une flamme partiellement prémélangée composée de 50% H₂ et 50% CO. La distance a donc été variée de 0,45 mm, Figure 2.8a, à 1 mm, Figure 2.8b. Comme il est possible de le voir, les courbes de la Figure 2.8b varient beaucoup moins d'un point à l'autre comparativement à celles de la Figure 2.8a. L'utilisation d'une distance radiale de 1 mm entre les points semble être la meilleure solution. Cette distance est d'ailleurs utilisée par Ishizuka et Sakai (1988), Mishra *et al.* (2006) et Nguyen *et al.* (1996).

À la suite de cette analyse de sensibilité et dans le but d'obtenir des résultats précis et faciles à analyser, les paramètres finaux d'acquisition de données consistent à moyenniser 700 images acquises à 10 Hz, ce qui donne un temps d'acquisition d'environ 70 secondes pour chacun des angles de polarisation, et à ajuster la distance entre chacune des mesures à tous les millimètres.

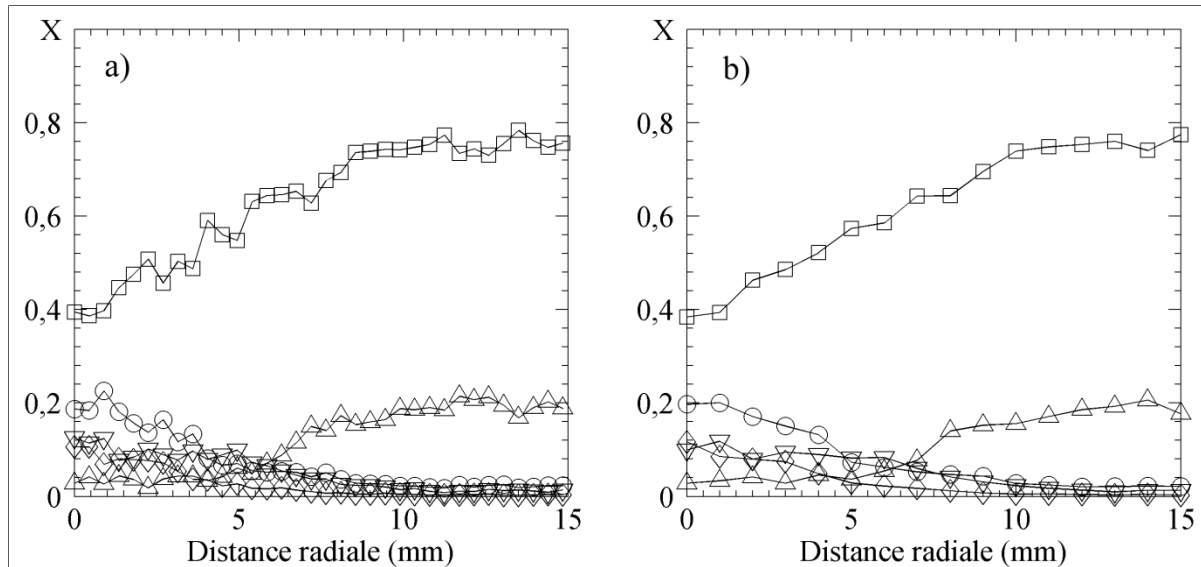


Figure 2.8 Variation des espèces mesurées ($\square = \text{N}_2$, $\Delta = \text{O}_2$, $\circ = \text{CO}$, $\diamond = \text{H}_2$, $\nabla = \text{CO}_2$) selon l'axe radial pour une résolution de : a) 0,45 mm et b) 1 mm

2.3.3 Montage expérimental (température)

Pour effectuer les mesures de température, le montage de la Figure 2.3 a été légèrement modifié en enlevant le spectrographe et le filtre Rayleigh. Le montage final était d'ailleurs semblable à celui de Lafay *et al.* (2008) et de Ötügen et Namer (1988). L'angle de polarisation a été ajusté à 250 degrés afin d'augmenter l'intensité du laser passant dans la flamme et la période d'ouverture de l'intensificateur a été diminuée au minimum, soit 210 ns, dans le but d'éliminer la chimioluminescence de la flamme (Lafay *et al.*, 2008).

La technique utilisée pour mesurer la température consiste tout d'abord à acquérir trois images différentes : une image pour la référence dans l'air ambiant, une autre pour éliminer la réflexion provenant de la lumière ambiante et une dernière pour la mesure dans la flamme. Pour chacune des images, 200 images ont été accumulées et moyennées tel que suggéré par Lafay *et al.* (2008). Un test a été effectué en augmentant le nombre d'images jusqu'à 700, mais aucune précision supplémentaire n'a été obtenue. Une fois ces trois images obtenues, l'image du bruit provenant de la lumière ambiante est soustraite de celles de la référence et de la flamme. Par la suite, la variation de l'intensité du signal dans l'air ambiant et dans la

flamme est extraite. À l'aide de ces données et en connaissant la température ambiante, on peut ensuite calculer la température dans la flamme selon (Lafay *et al.*, 2008) :

$$T(r, z) = T_0(r, z) \frac{I_0(r, z)}{I(r, z)} \sigma_N \quad (2.1)$$

$$\sigma_N = \frac{\sum_j X_j(r, z) \sigma_j}{\sum_i X_i(r, z) \sigma_i} \quad (2.2)$$

Où $T(r, z)$ représente la température, $I(r, z)$, l'intensité du signal Rayleigh, X , la fraction molaire de l'espèce et σ , sa section transversale. L'indice 0 est utilisé pour l'air ambiant, i , pour les espèces dans l'air ambiant et j , pour les espèces dans la flamme. Les valeurs des fractions molaires des différentes espèces présentes dans la flamme ont été obtenues à l'aide de la spectroscopie. Le Tableau 2.3 regroupe les sections transversales des espèces mesurées relativement à celle de l'azote à 295 K (Sutton et Driscoll, 2004). Pour ce qui est des sections transversales des espèces présentes dans la flamme, celles-ci peuvent être considérées comme indépendantes de la température tel que mentionné par Lafay *et al.* (2008) ainsi que Zhao et Hiroyasu (1993).

Tableau 2.3 Sections transversales relatives des espèces
à 300 K

Espèce	Section transversale relative
N ₂	1,00
O ₂	0,96
H ₂	0,24
CO	1,36
H ₂ O	0,86
CO ₂	2,50

2.3.4 Conditions d'opération

Le Tableau 2.4 résume les conditions d'opération pour les flammes laminaires partiellement prémélangées et de diffusion considérées dans cette étude. La richesse (ϕ) représente le niveau de prémélange partiel du mélange, où $\phi = 3$ pour une flamme partiellement prémélangée et $\phi = \text{infini}$ pour une flamme de diffusion. Les débits des carburants et de l'air ont été ajustés afin de garder un débit laminaire à la sortie du brûleur et un nombre de Reynolds constant à 1 400. Pour ce nombre de Reynolds et selon le carburant, la vitesse moyenne du mélange était de 19,8 m/s pour la flamme de diffusion d'hydrogène et elle variait entre 3,0 m/s et 11,1 m/s pour les flammes partiellement prémélangées.

Tableau 2.4 Conditions d'opération

Paramètre d'opération	Valeur
Richesse ϕ	3, 6, 12, infini
Température initiale du mélange, K	295
Pression du mélange, atm	1
Nombre de Reynolds	1 400
Vitesse moyenne (flamme de diffusion)	19,8 m/s
Vitesse moyenne (flamme prémélangée)	Entre 3,0 et 11,1 m/s

2.3.5 Analyse d'incertitude

L'analyse d'incertitude décrite dans le Chapitre 1 a été reprise dans le présent chapitre afin d'obtenir l'incertitude sur la richesse des mélanges, la hauteur de flamme et la température de flamme. Le Tableau 2.5 présente les incertitudes systématiques à considérer pour les débitmètres et pour la mesure de la hauteur. Par la suite, le Tableau 2.6 présente l'incertitude globale obtenue pour toutes les richesses ainsi que pour toutes les hauteurs.

Tableau 2.5 Résumé des incertitudes systématiques des appareils de mesure

Équipement	Plage d'opération	Erreur de lecture	Incertitude B_{x_i}
Débitmètre	0-15 L/min	$B_{\text{Précision}} - \pm 1,5\%$ de la pleine échelle	1,6%
		$B_{\text{Répétabilité}} - \pm 0,5\%$ de la pleine échelle	
Hauteur	0-25 cm	$B_{\text{Précision de la règle}} - \pm 0,1$ cm	0,12 cm
		$B_{\text{Dimension pixel caméra}} - \pm 0,07$ cm	

Tableau 2.6 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de richesse et de hauteur de flamme

	Richesse		Hauteur (cm)	
	Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Carburant 1	Infinie	---	32,58	1,57%
	12,09	1,87%	21,04	1,56%
	6,03	1,61%	13,04	2,25%
	3,01	1,72%	8,96	2,67%
Carburant 2	3,02	2,53%	6,03	2,57%
Carburant 3	3,02	3,04%	6,37	2,14%
Carburant 4	3,00	3,44%	6,40	2,21%
Carburant 5	3,18	3,70%	5,84	2,99%

Pour ce qui est de la température, il faut tenir compte de l'écart-type obtenu pour la mesure des espèces chimiques dans l'air ambiant ainsi que dans la flamme de même que de l'incertitude associée aux débitmètres, soit 1,6%. De plus, comme la température est obtenue en moyennant cinq mesures selon l'axe radial, l'écart-type associé à cette moyenne est également considéré dans le calcul d'incertitude. En utilisant les Équations 1.4 à 1.6, on obtient une incertitude variant entre 2,65% et 7,13% pour la température de flamme, ce qui

est similaire à l'incertitude approximative de 10% associée à la méthode de Rayleigh (Lee, 2008). Les incertitudes calculées pour chacun des carburants sont présentées à l'Annexe III.

2.4 Résultats expérimentaux et discussion

Cette section présente tout d'abord les profils radiaux des concentrations des espèces chimiques majeures et de la température pour une flamme pure d'hydrogène à deux différentes richesses et quatre valeurs de z/H_T . Par la suite, l'influence de la richesse sur les concentrations des espèces et la température, toujours pour la flamme d'hydrogène pur, est présentée, mais pour un z/H_T de 20% seulement. Finalement, l'influence du ratio H_2/CO sur les concentrations des espèces chimiques et la température est présentée pour une richesse de 3 et un ratio z/H_T de 20%.

2.4.1 Comparaison entre une flamme d' H_2 de diffusion et partiellement prémélangée

La Figure 2.9 présente les profils radiaux expérimentaux des concentrations des espèces chimiques majeures (H_2 , H_2O , N_2 et O_2) ainsi que de la température pour une flamme d'hydrogène pur. Deux flammes, diffusion (gauche) et partiellement prémélangée avec $\phi = 3$ (droite), sont présentées pour quatre différentes positions axiales adimensionnelles z/H_T (10%, 20%, 40% et 80%).

Pour la flamme de diffusion (gauche), près de la sortie du brûleur ($z/H_T = 10\%$), aucun prémélange n'a encore eu lieu entre le carburant et l'air ambiant, ce qui explique la faible température de flamme ainsi que la faible concentration d' H_2O , d' O_2 et de N_2 sur l'axe central. Toutefois, à une distance radiale d'environ 7 mm, soit à la périphérie de la flamme où le mélange est stoechiométrique, la quantité d' H_2O est maximale avec une concentration de 30%. Ceci correspond aussi au point où le carburant est presque totalement consommé, tel que mentionné par Cheng *et al.* (2006). De plus, jusqu'à une distance radiale d'environ 7 mm, la concentration d' O_2 dans la flamme reste nulle, ce qui indique que la quantité d' O_2 de

l'air ambiant qui se diffuse dans la flamme est entièrement consommée pour produire de l' H_2O . À cette distance radiale, la concentration d' O_2 commence à augmenter et croise le profil d' H_2 . L'intersection radiale des deux profils correspond également à la distance radiale où la température de flamme et la fraction molaire d' H_2O sont maximales, tel qu'observé par Cheng *et al.* (2006) et Toro *et al.* (2005). La température de flamme maximale mesurée est de 2370 K, ce qui est similaire à la température de flamme adiabatique de 2380 K. En augmentant la valeur de z/H_T de 10% à 40%, la concentration centrale d' H_2 diminue puisque l'hydrogène réagit avec l'oxygène présent dans l'air pour former de la vapeur d'eau au centre de la flamme. La concentration centrale d' H_2O continue ensuite d'augmenter jusqu'à ce qu'elle atteigne une valeur maximale correspondant à un mélange stoechiométrique à $z/H_T = 40\%$. Toutefois, la valeur radiale maximale d' H_2O demeure constante à environ 30%, ce qui est proche de la valeur stoechiométrique de 35%. La température au centre de la flamme augmente jusqu'à une valeur de $z/H_T = 40\%$ avant de diminuer lentement lorsqu'on se déplace vers la pointe de la flamme tandis que la valeur maximale obtenue demeure constante. De plus, la valeur maximale mesurée se déplace selon l'axe radial en fonction de la hauteur de mesure. En effet, à $z/H_T = 10\%$, la valeur maximale se retrouve à $r = 5,5$ mm, se déplace à $r = 7,5$ mm à $z/H_T = 20\%$ et se situe finalement dans le centre de la flamme pour les autres hauteurs. Ceci indique donc que la largeur de flamme augmente légèrement avec z/H_T avant de commencer à diminuer après $z/H_T = 20\%$, ce qui a d'ailleurs été observé visuellement lors des expérimentations. La présence croissante de N_2 sur l'axe central indique que le niveau de prémélange dans la flamme augmente également. En augmentant la valeur de z/H_T à 80%, l'absence d' H_2 au centre de la flamme indique que cette espèce a complètement réagi précédemment pour produire l' H_2O , ce qui résulte en une diminution de la concentration d' H_2O et une augmentation de l' O_2 mesuré sur l'axe central causé par la diffusion de l'air dans la flamme et les produits de combustion. De plus, comme les réactions d'oxydation sont terminées et qu'il y a mélange entre l'air ambiant et les gaz brûlés, la température de flamme diminue considérablement. Finalement, la diffusion radiale des produits de combustion est responsable de l'élargissement de la concentration des espèces qui devient uniforme pour le N_2 , l' H_2O et l' O_2 .

Pour la flamme partiellement prémélangée, la Figure 2.9 (droite) démontre que, au fur et à mesure que la valeur de z/H_T augmente, et ce, jusqu'à $z/H_T = 80\%$, la concentration centrale d' H_2 diminue tandis que la concentration centrale de N_2 augmente, que celle d' H_2O demeure constante et que la température de flamme augmente. Plus spécifiquement, puisque l'air est déjà mélangé avec le carburant à la sortie du brûleur, l'azote et l'eau sont déjà présents à $z/H_T = 10\%$ et la température de flamme centrale est plus élevée que pour la flamme de diffusion. Toutefois, comme l' O_2 et une partie de l' H_2 ont déjà réagi pour former de l' H_2O , la concentration d' O_2 est très faible. Vandooren *et al.* (1997) ont également observé le même phénomène pour une flamme riche d'un mélange $H_2/CO/N_2O/Ar$. De plus, à $z/H_T = 10\%$, la valeur maximale d' H_2O mesurée, qui correspond à celle d'un mélange stoechiométrique, n'est pas au centre de la flamme, mais plutôt à une distance radiale d'environ 5 mm indiquant la diffusion rapide du mélange dans l'air alors que la flamme apparaît à la stoechiométrie. Donc, à $z/H_T = 10\%$, le mélange riche en carburant s'est déjà diffusé dans l'air sur une distance de 1 mm illustrant le fort coefficient de diffusion de l'hydrogène.

En comparant les deux flammes (diffusion et partiellement prémélangée) pour un même z/H_T , on peut conclure que la structure de flamme dépend du niveau de prémélange. Par exemple, tout l'hydrogène brûle plus rapidement avec la flamme partiellement prémélangée qu'avec la flamme de diffusion. En effet, à $z/H_T = 40\%$, environ 5% d' H_2 est détecté pour $\phi = 3$ (Voir Figure 2.9 droite) tandis qu'il reste encore 20% d' H_2 dans la flamme de diffusion. Pour ce qui est de la température de flamme, les valeurs centrales et maximales sont plus élevées avec la flamme partiellement prémélangée qu'avec la flamme de diffusion. De plus, la valeur maximale de la température est obtenue à une distance radiale plus petite pour la flamme partiellement prémélangée que pour la flamme de diffusion indiquant une flamme plus mince, ce qui a d'ailleurs été observé lors des expérimentations.

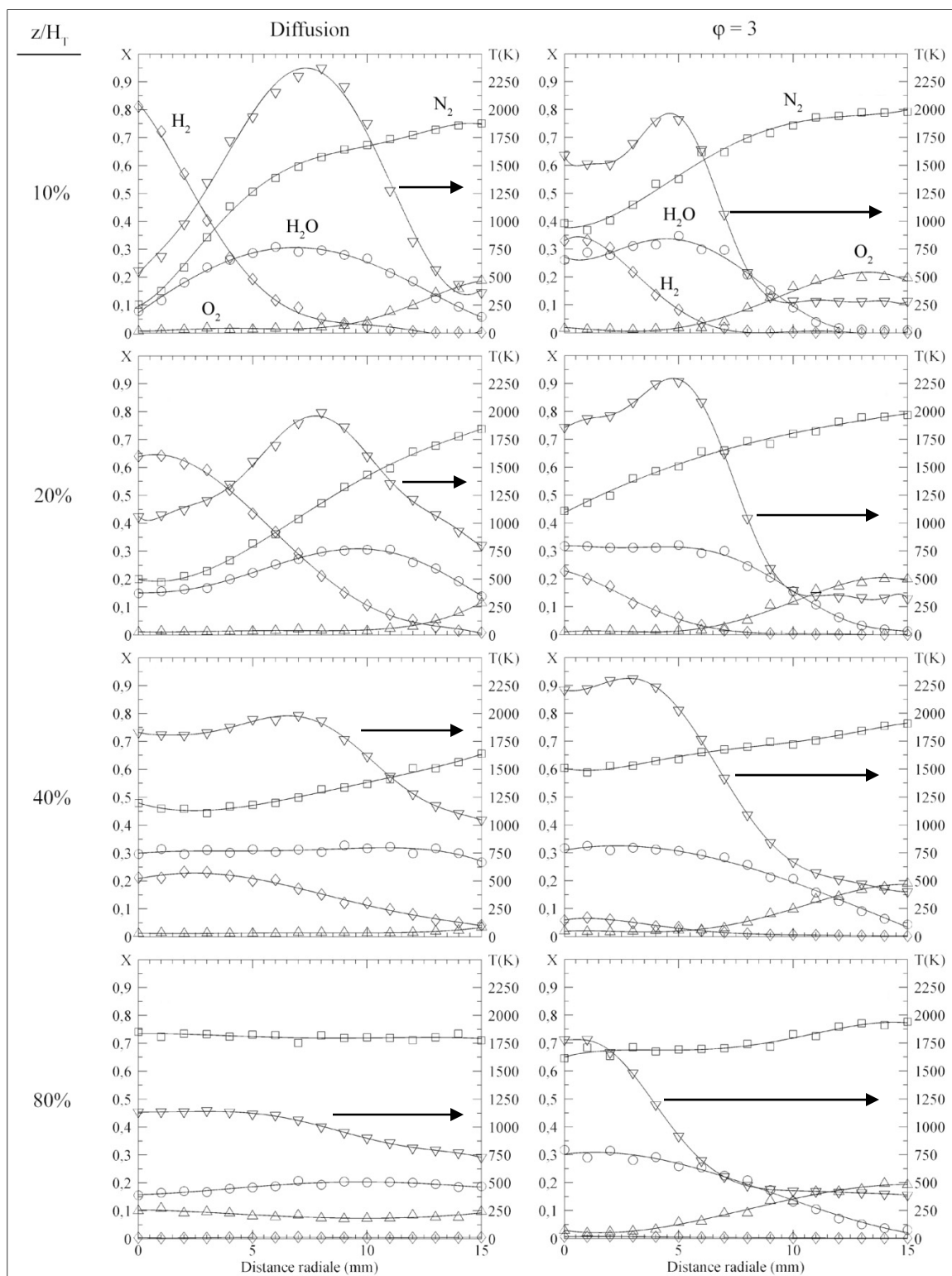


Figure 2.9 Profils radiaux des concentrations volumiques des espèces chimiques majeures et de la température pour une flamme d' H_2 pur avec $\phi = \infty$ (gauche) et $\phi = 3$ (droite) ($\square = N_2$, $\Delta = O_2$, $\circ = H_2O$, $\diamond = H_2$, $\nabla = T$)

D'un autre côté, certaines similitudes entre les deux flammes peuvent aussi être observées. Tout d'abord, une fois que la concentration maximale d' H_2O est atteinte à une certaine valeur de z/H_T , elle demeure constante à une valeur de z/H_T plus élevée jusqu'à ce que le carburant soit entièrement consommé avant de commencer à diminuer. Cette tendance a aussi été observée dans des flammes de diffusion et partiellement prémélangées de méthane (Ishizuka et Sakai, 1988; Nguyen *et al.*, 1996) et d'hydrogène (Cheng *et al.*, 2006; Toro *et al.*, 2005). Deuxièmement, la concentration radiale d' O_2 commence à augmenter quand la concentration d' H_2 est presque complètement consommée indiquant la diffusion de l'air dans les produits de combustion.

2.4.2 Influence du niveau de prémélange sur la structure de flamme

La Figure 2.10 présente les profils radiaux des concentrations des espèces majeures (H_2 , H_2O , N_2 et O_2) et de la température pour une flamme d'hydrogène pur à des richesses variant entre une flamme de diffusion et $\phi = 3$, mais pour un z/H_T de 20% seulement puisque la même tendance a été observée pour les autres hauteurs. Cette mesure se situe d'ailleurs à l'extérieur du cône lumineux visible sur la Figure 2.1. Tout d'abord, on remarque que l'augmentation du niveau de prémélange a pour conséquence d'augmenter la température de flamme centrale et de déplacer radialement le point maximal mesuré vers le centre de la flamme. Ceci indique donc que la largeur de la flamme diminue avec l'augmentation de la richesse du mélange, ce qui a été observé expérimentalement. De plus, l'addition d'air au carburant augmente légèrement la température de flamme comparativement à la température observée pour la flamme de diffusion. Par contre, peu importe la quantité d'air ajouté, la température maximale mesurée est sensiblement la même, soit 2250 K, ce qui est très proche de la température de flamme adiabatique de l'hydrogène. La température maximale mesurée est aussi similaire à celle obtenue par Aeschliman *et al.* (1979) ainsi que par Cheng *et al.* (2006).

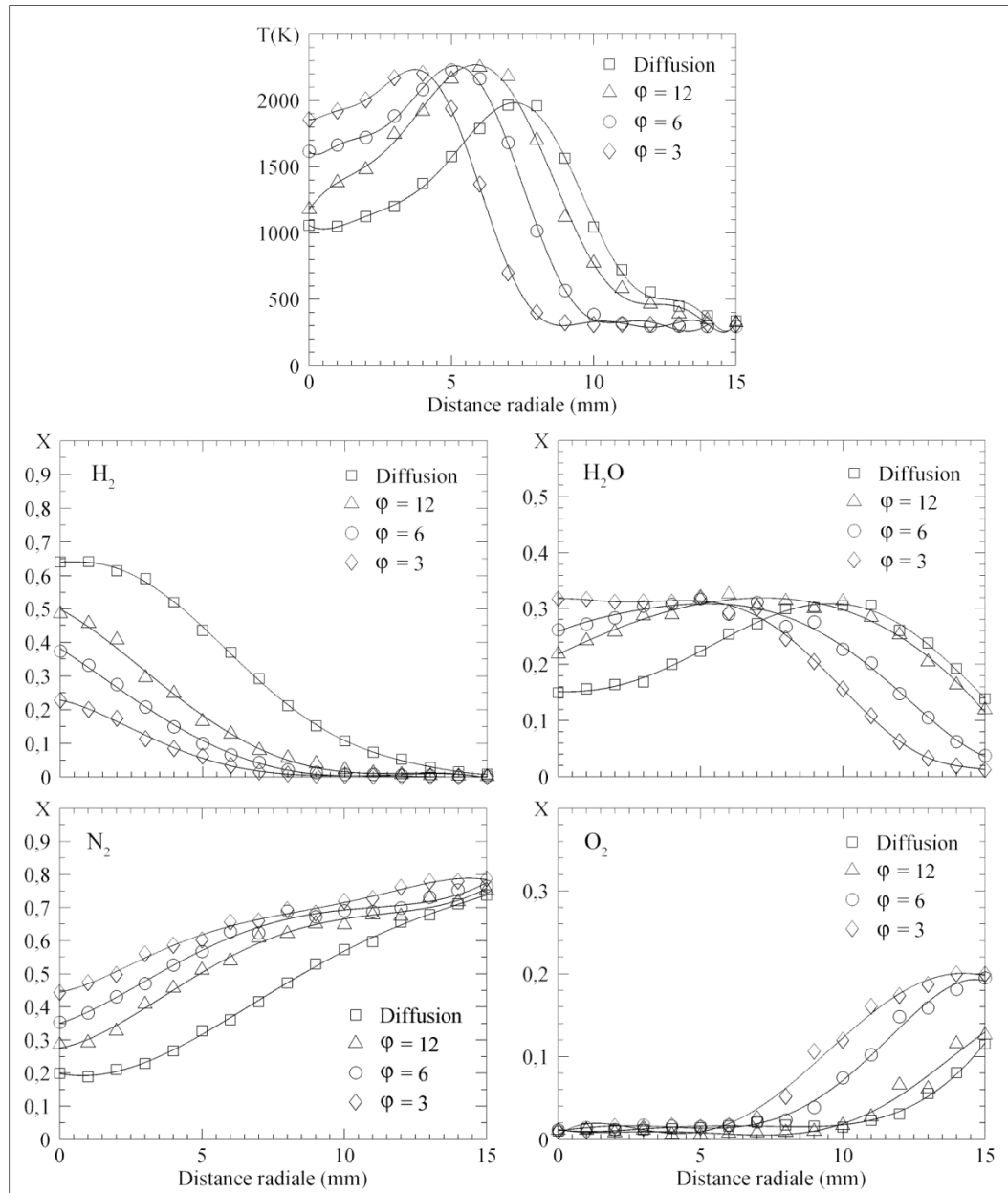


Figure 2.10 Profils radiaux des concentrations des espèces chimiques majeures et de la température pour une flamme d' H_2 pur à $z/H_T = 20\%$

Deuxièmement, on observe que l'augmentation de la richesse résulte en une diminution de l' H_2 mesuré au centre de la flamme. De plus, la pente à laquelle l' H_2 diminue dans la direction radiale est moins prononcée pour $\phi = 12, 6$ et 3 que pour la flamme de diffusion. Aussi, une concentration nulle d' H_2 est obtenue à la même distance radiale ($r = 9$ mm) pour $\phi = 6$ et 3 . Pour $\phi = 12$, la concentration d' H_2 devient nulle seulement à $r = 11$ mm, ce qui

indique un élargissement de la flamme pour les mélanges très riches. Troisièmement, les profils radiaux de l' H_2O révèlent que la valeur centrale augmente et que la valeur maximale se déplace vers le centre de la flamme lorsqu'une plus grande quantité d'air est prémélangée au carburant. En comparant les profils d' H_2 et d' H_2O , on observe que la valeur maximale d' H_2O correspond au point où le carburant est presque entièrement consommé (environ 10% restants), peu importe la richesse du mélange. Ce phénomène est dû au fait qu'en présence de prémélange, moins d'air se diffuse dans la flamme afin que le mélange atteigne la stoechiométrie et que l' H_2 réagisse. Donc, plus le carburant réagit tôt, plus il produit de l' H_2O à une faible hauteur alors que pour $\phi = 3$, $z/H_T = 20\%$ correspond en fait au mélange stoechiométrique en position centrale.

Finalement, en continuant d'ajouter de l'air au carburant, la concentration centrale de N_2 augmente tandis que la concentration d' O_2 centrale demeure à 0% puisqu'elle a réagi, mais commence à augmenter à une distance radiale plus petite pour les flammes partiellement prémélangées, ce qui indique que la largeur de la flamme diminue lorsque la richesse diminue. Ceci a d'ailleurs été observé visuellement lors des manipulations expérimentales. De plus, la comparaison des profils d' O_2 et d' H_2O révèle que la concentration maximale d' H_2O demeure constante jusqu'à ce que la concentration d' O_2 commence à augmenter. D'autres auteurs ont aussi rapporté cette tendance pour des flammes de méthane (Gore et Zhan, 1996; Nguyen *et al.*, 1996) et d'hydrogène (Cheng *et al.*, 2006; Toro *et al.*, 2005).

2.4.3 Influence du ratio H_2/CO sur la structure de flamme

Maintenant que les flammes d' H_2 ont été caractérisées, l'influence de l'ajout de CO sera étudiée. La Figure 2.11 présente donc l'influence du ratio H_2/CO sur les concentrations des espèces chimiques majeures (H_2 , CO, H_2O , CO_2 , N_2 et O_2) et sur la température de flamme pour une richesse de 3 à un $z/H_T = 20\%$. Tout d'abord, on remarque que la température pour la flamme d' H_2 pur est plus élevée que celle des carburants contenant du CO. Ce résultat est toutefois contre-indicatif, car la température de flamme adiabatique du CO (2 400 K) est légèrement plus élevée que celle de l' H_2 (2 350 K), ce qui devrait entraîner une hausse de la

température de flamme. La diminution de température pourrait toutefois être expliquée par la présence plus élevée de CO_2 dans la flamme, ce qui augmente les pertes par radiation. Pour ce qui est des carburants contenant du CO, les températures de flamme sont très similaires sauf pour le carburant contenant seulement 5% d' H_2 où la température de flamme centrale est moins élevée que pour les autres carburants. Pour cette flamme, le cône lumineux à la sortie du brûleur était beaucoup plus allongé que pour les autres flammes et la mesure à $z/H_T = 20\%$ se situait à l'intérieur de ce cône, donc avant que les réactions chimiques aient lieu, contrairement aux autres carburants où la mesure s'effectuait au-dessus du cône. En effet, comme la vitesse de flamme du CO est plus faible que celle de l' H_2 , les réactions chimiques se produisent plus loin dans la flamme donc la température demeure basse plus longtemps.

Les profils radiaux des espèces H_2 et CO représentent la variation de la concentration du carburant et il est possible de remarquer que la concentration centrale d' H_2 diminue avec l'augmentation de la concentration centrale de CO lorsque le ratio H_2/CO est changé d'un carburant à l'autre. D'ailleurs, l'augmentation du CO dans le carburant diminue la quantité d' H_2O produite dans la flamme et augmente la concentration de CO_2 , tel qu'attendu. De plus, la concentration centrale d' H_2O est proche de la valeur stoechiométrique pour chacun des carburants. Toutefois, la concentration centrale de CO_2 est plus basse que la valeur stoechiométrique, ce qui indique que la concentration axiale maximale de CO_2 est obtenue à une valeur de z/H_T plus élevée. Des mesures expérimentales effectuées à $z/H_T = 40\%$, voir Figure-A IV-1 de l'Annexe IV, démontrent que la concentration axiale de CO_2 est égale à la concentration stoechiométrique pour tous les carburants. Cette observation sera d'ailleurs discutée au paragraphe suivant. Pour les profils de N_2 et O_2 , ils semblent suivre la même tendance et ne dépendent pas du ratio H_2/CO . Toutefois, la diffusion du carburant dans l'air ambiant semble se produire plus rapidement lorsque la concentration de CO dans le carburant augmente, ce qui a pour conséquence une légère diminution de la largeur de flamme. Cette différence au niveau de la largeur de flamme a d'ailleurs également été observée dans la partie visible de la flamme lors des expérimentations.

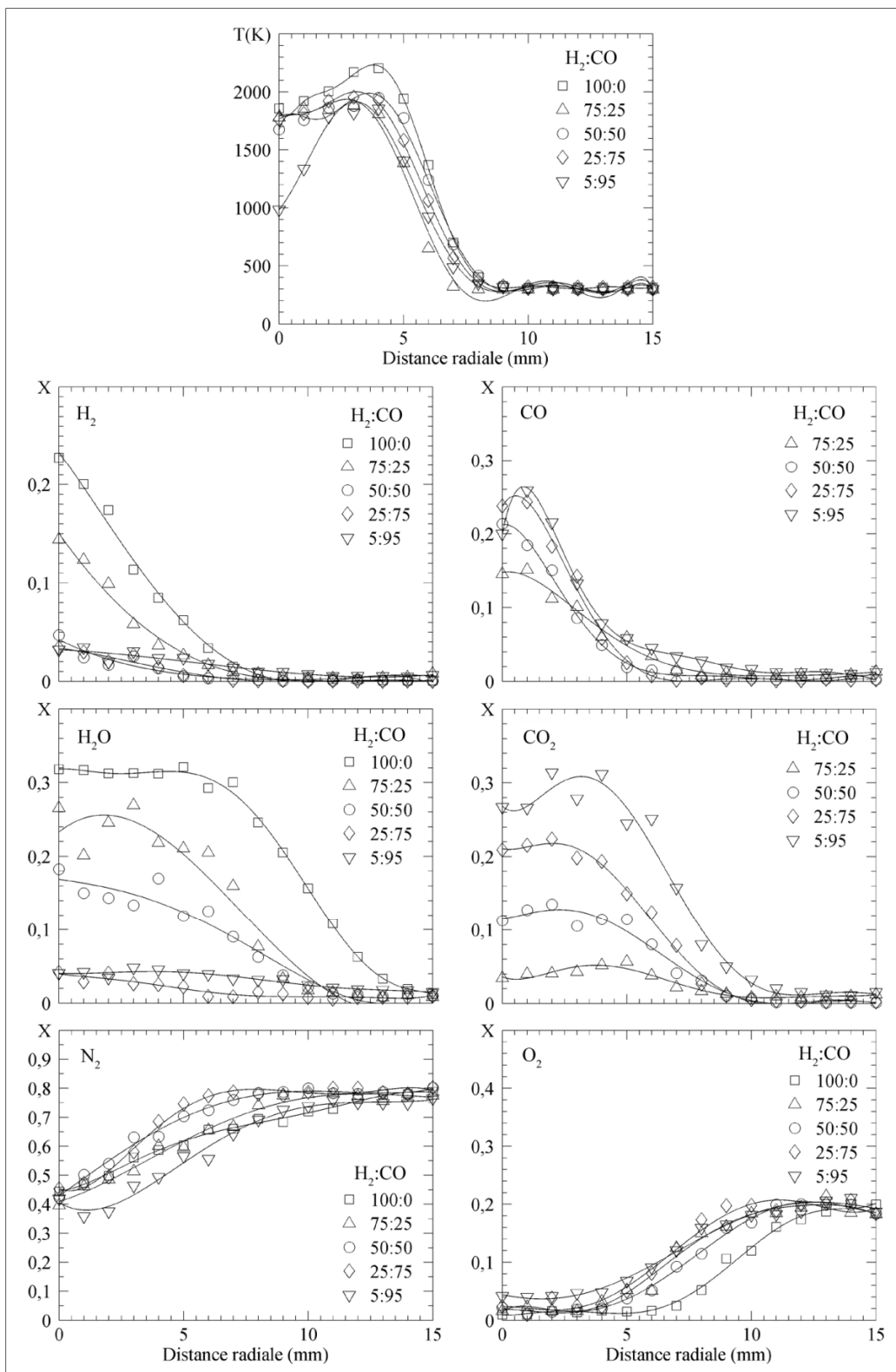


Figure 2.11 Profils radiaux des concentrations des espèces chimiques majeures et de la température pour des flammes d' H_2/CO à $z/H_T = 20\%$

Dans le but d'expliquer la différence en hauteur à laquelle la concentration de CO_2 devient maximale et égale à la valeur stoechiométrique tel que mentionné précédemment, la Figure 2.12 présente la variation de α , qui est défini comme étant le ratio entre la concentration de CO_2 mesurée et la valeur obtenue lors d'une combustion stoechiométrique, en fonction du ratio H_2/CO à un z/H_T de 20% et 40%. Tout d'abord, à $z/H_T = 40\%$, α est proche de 1 pour tous les carburants, ce qui indique une concentration de CO_2 mesurée correspondant à la valeur stoechiométrique de même qu'une oxydation complète du CO présent dans le carburant. Toutefois, à $z/H_T = 20\%$, on peut observer qu' α demeure constant à 0,8 avant de diminuer rapidement à un ratio H_2/CO de 3, ce qui illustre une possibilité de différence dans les taux de réaction chimique. De ce fait, un regard sur les réactions chimiques impliquées dans la production de CO_2 s'avère nécessaire. La réaction principale pour l'oxydation du CO, soit $\text{CO} + \text{O}_2 = \text{CO}_2 + \text{O}$, est une réaction lente ayant une énergie d'activation élevée (Law, 2006), ce qui implique que la réaction $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$ devient l'étape critique (Frassoldati, Faravelli et Ranzi, 2007; Mueller, Yetter et Dryer, 1999; Sun *et al.*, 2007). Toutefois, la molécule OH, qui est produite lors de l'oxydation de l' H_2 , participe aussi dans la production d' H_2O à basse température. La concentration mesurée d' H_2O démontre qu'elle atteint une valeur maximale à $z/H_T = 20\%$ pour tous les carburants, ce qui suggère que les réactions produisant de l' H_2O sont plus rapides et se font au détriment de l'oxydation du CO. Le code PREMIX de CHEMKIN (*CHEMKIN 10101*, 2010) a donc été utilisé dans le but de calculer les profils de concentration du CO_2 et de l' H_2O ainsi que les taux nets de réaction à $\phi = 3$ pour les carburants contenant du CO. Le mécanisme chimique H_2/CO de Sun *et al.* (2007), qui contient 33 réactions et 15 espèces, a été utilisé. La Figure 2.13 présente les profils numériques du CO_2 couplés avec des lignes verticales indiquant la position dans la flamme où la concentration de CO_2 correspond arbitrairement à 90% de la concentration maximale de chaque carburant. Cette valeur a été choisie afin d'augmenter la clarté de la figure. La Figure 2.13 présente donc que la concentration stoechiométrique est obtenue plus rapidement lorsque la quantité de CO présente dans le carburant augmente, ce qui confirme les observations déduites de la Figure 2.12. Basé sur les simulations, la réaction principale d'oxydation du CO est $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$. De plus, pour les deux carburants ayant un ratio H_2/CO faible, donc un α de 0,8 selon la Figure 2.12, les résultats des simulations ont aussi

révélé que 90% de la concentration maximale de CO_2 est atteinte approximativement à la même distance sur la Figure 2.13, ce qui confirme les observations expérimentales. Donc, des vitesses de réaction chimique plus lentes peuvent expliquer les mesures expérimentales de CO_2 inférieures aux concentrations stoechiométriques pour des ratios H_2/CO élevés à $z/H_T = 20\%$. Finalement, les profils d' H_2O ont aussi été analysés et il a été observé que la concentration stoechiométrique d' H_2O est atteinte plus tôt que celle du CO_2 (Voir Figure-A IV-2 de l'Annexe IV) grâce à la réaction principale $\text{OH} + \text{H}_2 = \text{H} + \text{H}_2\text{O}$.

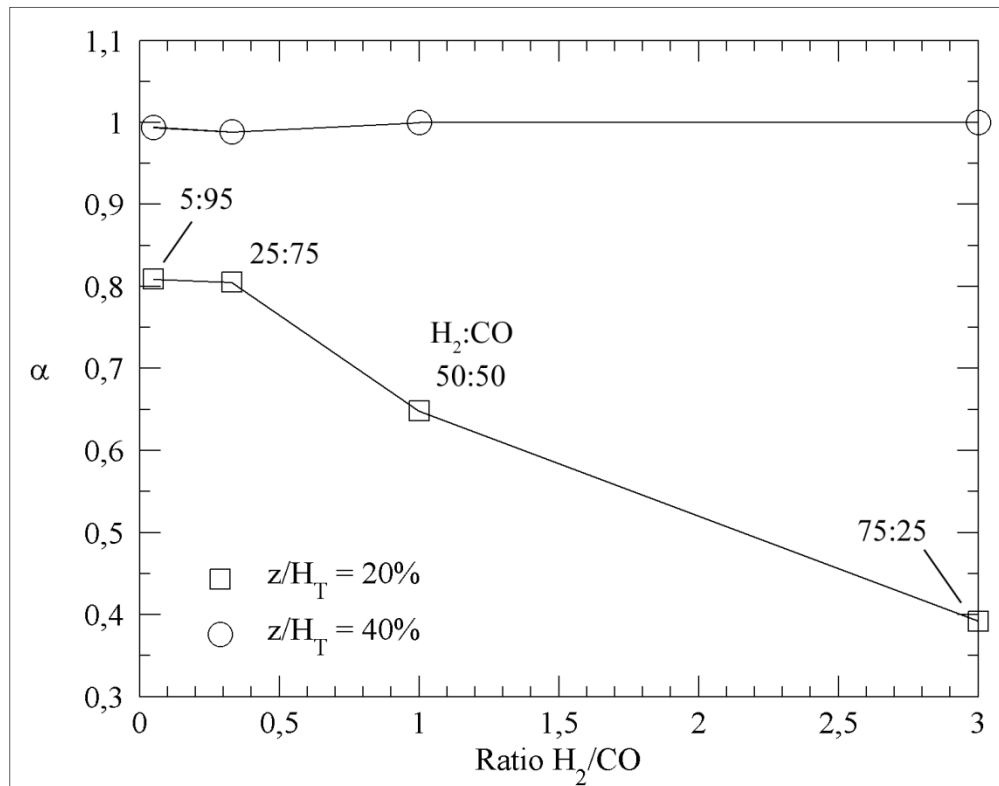


Figure 2.12 Variation de α avec la hauteur en fonction du ratio H_2/CO

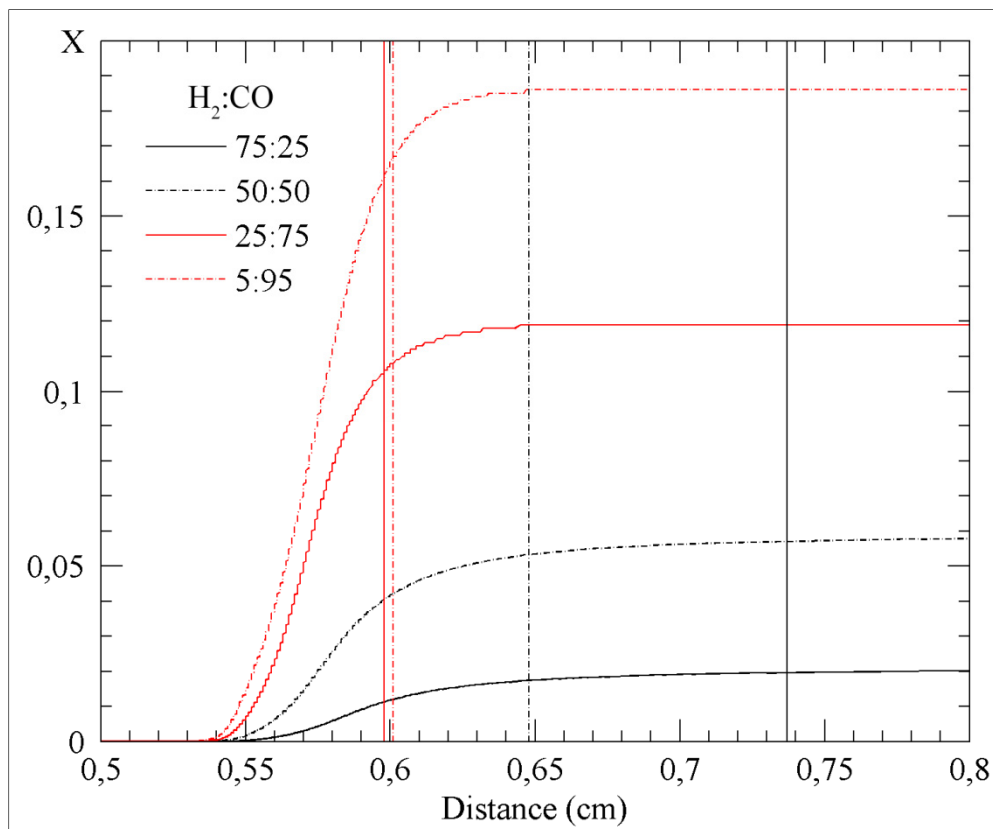


Figure 2.13 Profil numérique de CO₂ à $\phi = 3$ pour tous les carburants

2.5 Conclusion

Pour conclure, l'objectif principal était d'étudier les effets de la variation du ratio H₂/CO sur la structure chimique de la flamme (H₂, CO, H₂O, CO₂, O₂ et N₂) ainsi que sur la température de flamme, et ce, pour une flamme partiellement prémélangée. De plus, l'influence de la richesse sur la structure de flamme et donc sur les espèces chimiques présentes ainsi que sur la température a également été étudiée pour un mélange d'hydrogène seulement.

Pour la flamme d'hydrogène, l'augmentation du niveau de prémélange a entraîné l'augmentation de la température au centre de la flamme ainsi qu'un déplacement de la position radiale de la température de flamme vers le centre de celle-ci correspondant à un amincissement de la partie visible de la flamme. En ce qui concerne la concentration d'H₂, l'augmentation du niveau de prémélange a entraîné sa diminution au centre de la flamme, car

il réagissait plus tôt. De plus, une augmentation de la concentration centrale d'H₂O et un déplacement de sa valeur radiale maximale vers le centre de la flamme ont également été observés. La concentration de N₂ a augmenté dans le milieu de la flamme tandis que la concentration d'O₂ est demeurée à 0%. Toutefois, la concentration d'O₂ augmentait à une distance radiale plus près du centre du brûleur lorsque le niveau de prémélange a augmenté.

La variation du ratio H₂/CO a eu peu d'influence sur la température de flamme. En effet, même si l'augmentation de la concentration de CO dans le carburant devait entraîner une hausse de la température de flamme, la perte de chaleur par radiation due à une présence plus élevée de CO₂ dans la flamme est venue contrebalancer la hausse de température, ce qui a résulté en une température de flamme très similaire pour les quatre carburants contenant du CO. Pour tous les carburants, la concentration de CO₂ à $z/H_T = 20\%$ était seulement égale à une portion de la valeur stoechiométrique tandis que la concentration d'H₂O avait déjà atteint sa valeur maximale. Ceci pourrait être expliqué par les réactions chimiques rapides produisant l'H₂O comparativement à la production plus lente du CO₂ qui dépend de la réaction $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$.

CHAPITRE 3

SIMULATIONS NUMÉRIQUES

3.1 Introduction

À la suite de l'analyse des résultats sur l'effet du ratio H_2/CO sur la température de flamme ainsi que sur les espèces chimiques majeures présentes dans la flamme, il a été conclu qu'il s'avérerait nécessaire de reproduire numériquement ces expériences dans le but de voir la qualité de prédiction des différentes cinétiques chimiques. Ce chapitre présente donc une étude sur les différences observées sur les espèces chimiques majeures et sur la température de flamme lorsque divers mécanismes chimiques H_2/CO sont utilisés. De plus, considérant la présence importante de CO_2 dans la flamme, l'influence de la radiation est également étudiée. Pour conclure et dans le but de valider l'utilisation du modèle sur toute la plage de carburants, l'effet du ratio H_2/CO est simulé et comparé aux résultats expérimentaux obtenus. Ce chapitre est donc divisé de la façon suivante : tout d'abord, une revue de la littérature présente les travaux d'autres chercheurs reliés au présent projet; deuxièmement, la méthodologie expérimentale utilisée est décrite en détail; troisièmement, le modèle numérique est présenté; quatrièmement, les résultats numériques sont analysés et suivis de la validation du modèle pour toute la plage de carburants; finalement, une conclusion résume les principaux points observés.

3.2 Revue de la littérature

À ce jour, plusieurs mécanismes H_2/CO ont été développés, mais aucune étude portant sur la modélisation numérique d'une flamme d'un mélange H_2/CO n'a été effectuée. Dans cette section, les différents mécanismes H_2/CO sont tout d'abord présentés ainsi que les études effectuées dans le but de les valider. Par la suite, des travaux portant sur la comparaison de mécanismes sont présentés pour le méthane et l'hydrogène de même que des études portant sur les différences observées lorsque le phénomène de radiation est inclus.

3.2.1 Mécanismes H₂/CO

Yetter *et al.* (1991) ont établi un mécanisme H₂/CO/O₂ contenant 13 espèces et 28 réactions. Ce mécanisme a été validé au niveau des constantes des taux de réaction sur une grande plage de températures, de pressions, de richesses et de ratios C/H à l'aide de résultats expérimentaux. Kusharin *et al.* (1998) ont proposé un mécanisme H₂/CO de 13 espèces qui inclut les 21 réactions de l'oxydation de l'H₂ et les 15 réactions de l'oxydation du CO. Les paramètres des taux de réaction ont été tirés principalement de Warnatz *et al.* (1984), de Tsang et Hampson (1986) et de Baulch *et al.* (1992). Leur objectif était d'étudier l'influence du CO et du CO₂ sur la détonabilité de mélanges H₂-air. Mueller *et al.* (1999) ont étudié les effets de la présence de traces minimales de NO et NO₂ sur l'oxydation de l'H₂ et du CO à différentes pressions et températures, ce qui a permis de développer un mécanisme chimique détaillé valide pour les systèmes H₂/O₂, CO/H₂O/O₂ et CO/H₂O/N₂O. Ce mécanisme contient 21 espèces et 66 réactions. Les réactions formant ce mécanisme ont été tirées de Kim *et al.* (1994) et de Allen *et al.* (1997). Des modifications ont toutefois été apportées à certains paramètres d'Arrhenius, qui définissent la vitesse de réaction, afin d'incorporer des valeurs obtenues de publications plus récentes. Le mécanisme a d'ailleurs été validé en comparant les profils numériques d'H₂, de CO, de CO₂, de NO, de NO₂, d'O₂, d'H₂O et de température aux profils expérimentaux obtenus dans un réacteur continu.

Par la suite, Davis *et al.* (2005) ont optimisé le mécanisme de Mueller *et al.* (1999) pour les carburants H₂/CO seulement, celui-ci contenant 14 espèces et 30 réactions. Deux réactions ont d'ailleurs été ajoutées, soit $\text{HO}_2 + \text{H} = \text{O} + \text{H}_2\text{O}$ et $\text{HCO} + \text{O} = \text{CO}_2 + \text{H}$. Ce mécanisme a été utilisé avec CHEMKIN pour produire des résultats numériques de la vitesse de flamme laminaire, du délai d'allumage et du taux d'étirement lors de l'extinction afin de les comparer avec des résultats expérimentaux et numériques; ces derniers ayant été obtenus à l'aide du mécanisme non optimisé. Saxena et Williams (2006) ont pour leur part testé un sous-mécanisme pour l'hydrogène et le monoxyde de carbone composé également de 14 espèces et 30 réactions. La première différence observée au niveau des réactions comparativement au mécanisme de Davis *et al.* (2005) est l'élimination de la réaction $\text{CO} + \text{O} + \text{M} = \text{CO}_2 + \text{M}$,

celle-ci possédant une énergie d'activation élevée, ce qui la rend très lente (Law, 2006). D'ailleurs, en présence d'une très faible quantité d' H_2 , la réaction $CO + OH = CO_2 + H$ devient dominante (Law, 2006), ce qui pourrait expliquer la décision d'écarter cette réaction. Par contre, la réaction $CO + O + M = CO_2 + M$ demeure importante pour les systèmes à haute pression (Frassoldati, Faravelli et Ranzi, 2007; Li *et al.*, 2004; Mueller, Yetter et Dryer, 1999). La deuxième différence se situe au niveau de l'ajout de la réaction $O + OH + M = HO_2 + M$, réaction jouant un rôle important dans les systèmes à haute pression grâce à sa contribution sur la finalisation de la concentration d' HO_2 (Frassoldati, Faravelli et Ranzi, 2007). Ces modifications semblent toutefois se contredire quelque peu puisque les deux réactions sont importantes principalement à haute pression tandis que Saxena et Williams (2006) valident leur mécanisme pour de basses pressions. Finalement, les paramètres d'Arrhenius des taux de réaction ont été révisés en fonction de données récentes présentes dans la littérature. Dans le but de valider leur mécanisme, Saxena et Williams (2006) ont comparé des résultats numériques, obtenus à l'aide des logiciels CHEMKIN et FLAMEMaster, sur la vitesse de flamme laminaire de l'hydrogène, sur le taux d'étirement lors de l'extinction d'une flamme de diffusion d'hydrogène, sur la vitesse de flamme laminaire de mélanges H_2/CO et sur l'auto-allumage du CO.

Li *et al.* (2007) ont présenté un nouveau mécanisme C_1/O_2 dans lequel un sous-mécanisme pour les systèmes $CO/H_2/O_2$, contenant 39 réactions, a été mis à jour. Ce dernier est similaire au mécanisme de Davis *et al.* (2005), mais quelques changements ont été apportés. Tout d'abord, la réaction $HO_2 + H = H_2O + O$ a été enlevée, ce qui est souvent le cas dans les mécanismes H_2/O_2 en raison d'une grande incertitude au niveau des paramètres d'Arrhenius causée par la lenteur de la réaction (Goswami *et al.*, 2008). Deuxièmement, les réactions $HCO + HO_2 = CO_2 + OH + H$ (R30), $HCO + HCO = H_2 + CO + CO$ (R31) et $HCO + HCO = CH_2O + CO$ (R33) ont été ajoutées. La réaction R30 devient plus importante que la réaction $HCO + M = H + CO + M$ (R24) à basse température (Li *et al.*, 2007), ce qui pourrait justifier son inclusion au mécanisme. L'ajout des réactions R31 et R33 permettrait d'inclure l'interaction entre les molécules HCO puisque l'atome H se dissocie facilement compte tenu d'un lien faible avec le HCO (Li *et al.*, 2007). De plus, l'apparition de l'espèce CH_2O

entraîne l'addition de sept autres réactions entrant dans la production d'espèces reliées au mécanisme H_2/CO . Finalement, les paramètres d'Arrhenius des taux de réaction ont été révisés en fonction de données récentes présentes dans la littérature. Le mécanisme présenté par Li *et al.* (2007) a donné de bons résultats pour des mesures de vitesses de flamme pour des flammes prémélangées et pour des mesures de délai d'auto-inflammation. Sun *et al.* (2007) ont proposé un nouveau mécanisme H_2/CO composé de 15 espèces et de 33 réactions. Ce mécanisme est très similaire à celui de Li *et al.* (2007) puisque la principale différence se retrouve au niveau de l'ajout de la réaction $HO_2 + H = H_2O + O$ qui avait été écartée dans le mécanisme de Li *et al.* (2007), mais qui est présente dans le mécanisme de Davis *et al.* (2005). Par contre, l'inclusion de l'espèce CH_2O dans le mécanisme s'arrête à la réaction $HCO + HCO = CH_2O + CO$. En effet, Sun *et al.* (2007) n'ont pas inclus le sous-mécanisme du CH_2O présent dans le mécanisme de Li *et al.* (2007). Encore une fois, certains paramètres d'Arrhenius des taux de réaction ont été révisés en fonction de données récentes présentes dans la littérature. Différents codes du programme CHEMKIN ont été utilisés dans le but d'obtenir des résultats sur les vitesses de flamme laminaire, sur les températures d'auto-inflammation et sur les profils de réaction d'un réacteur à pression atmosphérique pour différents mélanges H_2/CO .

Frassoldati *et al.* (2007) ont mis à jour un sous-mécanisme $H_2/CO/O_2$, proposé initialement par Ranzi *et al.* (1994), composé de 31 réactions et de 14 espèces. Comparativement au mécanisme de Davis *et al.* (2005), trois réactions ne sont pas utilisées dans ce sous-mécanisme, soit $H + HO_2 = O + H_2O$ (comme dans le mécanisme de Li *et al.* (2007)), $O + H + M = OH + M$ et $HCO + O = CO + OH$. D'un autre côté, quatre réactions ont été ajoutées, soit $O + OH + M = HO_2 + M$ (R14) (comme pour le mécanisme de Saxena et Williams (2006)), $CO + H_2O = CO_2 + H_2$ (R24), $HCO + HO_2 = H_2O_2 + CO$ (R30) et $HCO + HO_2 = H + OH + CO_2$ (R32) (comme dans les mécanismes de Li *et al.* (2007) et de Sun *et al.* (2007)). Les résultats numériques obtenus ont été comparés avec des résultats expérimentaux sur les fractions molaires des espèces chimiques, sur les délais d'auto-inflammation et sur les vitesses de flamme laminaires tirés de la littérature.

Boivin *et al.* (2011) ont produit, à partir du sous-mécanisme H₂/CO proposé par Saxena et Williams (2006), un mécanisme réduit composé de 16 réactions seulement. Les résultats numériques obtenus à l'aide de ce mécanisme réduit se comparaient bien avec les résultats du mécanisme complet. Ils ont par la suite continué à réduire le mécanisme afin d'obtenir un mécanisme final pour l'oxydation du H₂/CO composé de quatre réactions globales seulement. Ils ont validé ce mécanisme réduit de quatre réactions à l'aide de résultats expérimentaux sur la vitesse de flamme et le temps d'auto-inflammation.

Le Tableau 3.1 résume les différences entre les principaux mécanismes H₂/CO au niveau des réactions chimiques qui sont présentes (+) ou non (-).

Tableau 3.1 Résumé des réactions présentes dans divers mécanismes H₂/CO

Réaction	Davis (2005)	Saxena (2006)	Li (2007)	Sun (2007)	Frassoldati (2007)
$\text{CO} + \text{O} + \text{M} = \text{CO}_2 + \text{M}$	+	-	+	+	+
$\text{HO}_2 + \text{H} = \text{H}_2\text{O} + \text{O}$	+	+	-	+	-
$\text{O} + \text{H} + \text{M} = \text{OH} + \text{M}$	+	+	+	+	-
$\text{HCO} + \text{O} = \text{CO} + \text{OH}$	+	+	+	+	-
$\text{O} + \text{OH} + \text{M} = \text{HO}_2 + \text{M}$	-	+	-	-	+
$\text{HCO} + \text{HO}_2 = \text{CO}_2 + \text{OH} + \text{H}$	-	-	+	+	+
$\text{HCO} + \text{HCO} = \text{H}_2 + \text{CO} + \text{CO}$	-	-	+	+	-
$\text{HCO} + \text{HCO} = \text{CH}_2\text{O} + \text{CO}$	-	-	+	+	-
$\text{CO} + \text{H}_2\text{O} = \text{CO}_2 + \text{H}_2$	-	-	-	-	+
$\text{HCO} + \text{HO}_2 = \text{H}_2\text{O}_2 + \text{CO}$	-	-	-	-	+

Tous ces mécanismes nécessitent toutefois d'être comparés entre eux pour éventuellement déterminer un mécanisme représentatif pour toutes les conditions d'opération utiles. Certains travaux ont d'ailleurs déjà été effectués dans le but de comparer différents mécanismes. Natarajan *et al.* (2007) ont mesuré la vitesse de flamme laminaire pour trois mélanges H₂/CO

(95:5, 50:50 et 5:95) pauvres ($0,6 \leq \phi \leq 1,05$) avec ou sans dilution (jusqu'à 40% de CO_2 par volume) ainsi que pour différentes températures des réactants (300 K à 700 K) et pressions (1 à 5 atm). Ces résultats ont ensuite été comparés aux prédictions numériques basées sur deux mécanismes de cinétique chimique : le mécanisme GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006) et celui de Davis *et al.* (2005). Pour tous les mélanges à température et pression ambiantes, les résultats obtenus selon le mécanisme de Davis *et al.* (2005) prédisaient mieux les vitesses de flamme que ceux obtenus avec le mécanisme GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006), avec ou sans dilution. Ce comportement peut s'expliquer en partie par le fait que le GRI-Mech est un mécanisme optimisé pour la combustion du méthane (CH_4) et qu'il comprend aussi des réactions H_2/CO . Une bonne prédiction était aussi maintenue avec les résultats du mécanisme de Davis *et al.* (2005) lorsque la pression augmentait. Par contre, lorsque la température des réactants augmentait, les deux mécanismes prédisaient des vitesses de flamme supérieures pour des mélanges contenant une quantité moyenne ou élevée d'hydrogène et inférieures pour des mélanges à faible quantité d'hydrogène.

Som *et al.* (2008) ont comparé des résultats expérimentaux sur la vitesse de flamme laminaire d'un mélange 50% CO / 50% H_2 avec des résultats numériques obtenus à l'aide de trois mécanismes de cinétique chimique (Davis *et al.* (2005), Mueller *et al.* (1999) et GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006)) sur une grande plage de richesses à température et pression ambiantes. Som *et al.* (2008) ont aussi conclu que le mécanisme de Davis *et al.* (2005) reproduisait plus adéquatement les résultats expérimentaux.

Similairement, Park *et al.* (2008) ont effectué une comparaison sur la vitesse de flamme laminaire d'un mélange 50% H_2 / 50% CO dilué avec 20% de CO_2 . Les mêmes mécanismes ont été utilisés, mais ils ont remplacé celui de Mueller *et al.* (1999) par celui de Sun *et al.* (2007). Lors de leurs comparaisons, Park *et al.* (2008) ont observé que le mécanisme de Sun *et al.* (2007) prédisait à la hausse les résultats expérimentaux tandis que les résultats numériques obtenus avec le mécanisme de Davis *et al.* (2005) et le GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006) concordaient mieux.

Petersen *et al.* (2007) ont comparé des temps expérimentaux de délai d'auto-inflammation avec des résultats numériques obtenus à l'aide des cinq mécanismes suivant : Davis *et al.* (2005), RAMEC (basé sur le GRI-Mech), Sun *et al.* (2007), Saxena *et al.* (2006) et Li *et al.* (2007). À partir des résultats, ils ont observé la présence d'un grand désaccord entre les résultats expérimentaux et ceux numériques à haute température pour tous les mécanismes.

Sun *et al.* (2007) ont comparé des températures d'auto-inflammation expérimentales en fonction de la concentration d'hydrogène avec leurs résultats numériques ainsi que ceux de deux autres mécanismes : Davis *et al.* (2005) et Li *et al.* (2007). Les prédictions de leur modèle étaient plus proches des résultats de Li *et al.* (2007) pour les mélanges ayant une concentration élevée d'hydrogène et plus proches des résultats de Davis *et al.* (2005) pour des concentrations d'H₂ plus faibles. En considérant toute la plage de concentrations d'H₂, les prédictions de leur modèle semblaient être en meilleur accord avec les résultats expérimentaux. Sun *et al.* (2007) ont aussi présenté des résultats expérimentaux et numériques de températures d'auto-inflammation en fonction de la pression pour un mélange 5% H₂ / 95% CO. Leur mécanisme a démontré une bonne concordance avec les résultats expérimentaux tandis que les deux autres mécanismes prédisaient soit à la hausse ou à la baisse les résultats expérimentaux à basses et hautes pressions. Finalement, leur mécanisme et celui de Davis *et al.* (2005) ont été comparés au niveau de la vitesse de flamme laminaire en fonction de la pression ainsi que pour divers mélanges H₂/CO et ils ont conclu que leurs résultats numériques étaient plus près des résultats expérimentaux que ceux de Davis *et al.* (2005).

Sung et Law (2008) ont étudié numériquement et expérimentalement les effets de la pression sur les délais et les températures d'auto-inflammation ainsi que sur les vitesses de flamme laminaire de mélanges H₂/CO. Quatre mécanismes ont été utilisés (Li *et al.* (2004), Davis *et al.* (2005), GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006) et Sun *et al.* (2007)) pour comparer avec les résultats numériques. Pour les délais d'auto-inflammation, les mécanismes de Li *et al.* (2004) et de Davis *et al.* (2005) donnaient des résultats similaires, soit un délai d'auto-inflammation constant jusqu'à une concentration de 80% de CO avant d'augmenter rapidement. Par contre,

avec le GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006), le délai d'auto-inflammation diminuait avant d'augmenter à une concentration de 80% de CO. Les résultats expérimentaux démontraient toutefois une augmentation pratiquement linéaire du délai d'auto-inflammation avec l'ajout de CO dans le carburant, ce qui était très différent des résultats numériques. Sung et Law (2008) ont ensuite modifié le mécanisme de Davis *et al.* (2005) en mettant à jour trois constantes cinétiques, ce qui a permis d'obtenir des résultats numériques très similaires à ceux obtenus expérimentalement. Pour les températures d'auto-inflammation et les vitesses de flamme laminaire, les résultats présentés étaient les mêmes que ceux de Sun *et al.* (2007).

En somme, plusieurs auteurs (Natarajan, Lieuwen et Seitzman, 2007; Park *et al.*, 2008; Som *et al.*, 2008; Sung et Law, 2008) considèrent que les résultats numériques obtenus à l'aide du mécanisme de Davis *et al.* (2005) concordent mieux avec les résultats expérimentaux pour la vitesse de flamme laminaire. Pour les délais d'auto-inflammation à haute température, il semble que tous les mécanismes soient incapables de bien prédire les résultats expérimentaux. En ce qui concerne les températures d'auto-inflammation, certaines modifications de constantes cinétiques du mécanisme de Davis *et al.* (2005) permettraient d'obtenir des résultats numériques valides (Sung et Law, 2008) tandis que Sun *et al.* (2007) considèrent leur mécanisme plus efficace. Dans ce mécanisme, trois réactions chimiques avaient été ajoutées, ce qui permettrait de couvrir toute la plage de concentrations d'hydrogène. Finalement, le Tableau 3.2 résume les paramètres validés (+) ou non (-) avec les divers mécanismes présentés précédemment.

Tableau 3.2 Résumé des paramètres validés avec divers mécanismes H₂/CO

Paramètre étudié	Davis (2005)	Saxena (2006)	Li (2007)	Sun (2007)	Frassoldati (2007)
Vitesse de flamme laminaire	+	-	-	+	+
Délai d'auto-inflammation	+	+	+	+	+
Température d'auto-inflammation	+	-	+	+	-

3.2.2 Modélisation numérique

De toutes les comparaisons effectuées entre les différents mécanismes H_2/CO , aucun modèle numérique ne semble comparer les mesures expérimentales des espèces chimiques majeures ainsi que de la température de flamme avec les résultats numériques de différents mécanismes. Toutefois, cette comparaison entre divers mécanismes a déjà été effectuée pour d'autres carburants tels que le méthane et l'hydrogène. De plus, puisque la combustion de mélanges H_2/CO entraîne la production de CO_2 et d' H_2O dans la flamme et que ces espèces sont considérées comme importantes dans la perte de chaleur par radiation, l'influence de la radiation sur la flamme est également présentée dans cette revue de littérature.

Bhadraiah et Raghavan (2011) ont utilisé différents mécanismes, incluant un mécanisme réduit et quatre mécanismes de réactions globales (deux de deux réactions et deux de quatre réactions), dans le but de recommander le mécanisme approprié qui permettrait de reproduire numériquement une flamme de diffusion méthane-oxygène tout en réduisant le temps de processeur (CPU) nécessaire pour obtenir une solution convergée. À la suite de comparaisons effectuées entre les différents mécanismes sur la température de flamme et sur les espèces principales (CH_4 , O_2 , CO_2 , H_2O et CO), ils ont conclu que le mécanisme modifié à deux réactions peut être recommandé pour reproduire raisonnablement, et en peu de temps, une flamme de méthane riche en oxygène. Pour leur part, Cheng *et al.* (2006) ont comparé des résultats expérimentaux et numériques des concentrations des espèces chimiques majeures et de la température dans une flamme de diffusion laminaire d'hydrogène ayant un nombre de Reynolds de 30. Les effets de la cinétique chimique sur la structure de flamme ont été analysés en utilisant cinq différents mécanismes : Miller et Bowman (1989), GRI-Mech 3.0 (Smith *et al.*, 2006), Mueller *et al.* (1999), Maas et Warnatz (1988) et O'Conaire *et al.* (2004). Une comparaison entre les valeurs mesurées et calculées a révélé que les cinq structures de flamme obtenues numériquement se comparent bien entre elles ainsi qu'avec les résultats expérimentaux. Ils ont donc conclu que la flamme étudiée ne serait pas appropriée pour étudier les effets de la cinétique chimique sur la structure de flamme.

Liu *et al.* (2002) ont étudié numériquement l'effet de la radiation sur la formation de la suie pour une flamme de diffusion laminaire d'un mélange éthylène-air stabilisée sur un brûleur à double écoulement. Ils ont rapporté que l'inclusion de la radiation dans le modèle entraînait une diminution de la température d'environ 125 K ainsi qu'une diminution de la zone de haute température. D'autres travaux effectués récemment par Liu *et al.* (2011), avec des conditions similaires, démontraient encore une fois une diminution de la température lorsque la radiation était incluse au modèle. Ils ont toutefois ajouté qu'une augmentation de la hauteur de flamme était également observable numériquement. Claramunt *et al.* (2004) ont analysé l'influence du niveau de prémélange ainsi que l'adéquation de différents sous-modèles mathématiques dans le but de modéliser une flamme laminaire d'un mélange méthane-air partiellement prémélangé stabilisée sur un brûleur à double écoulement. Un des sous-modèles étudiés était la perte de chaleur par radiation en utilisant l'hypothèse de la présence d'un transfert optiquement mince entre l'air environnant et les espèces chimiques présentes dans la flamme. Similairement à Liu *et al.* (2002; 2011), l'effet de la radiation entraînait une diminution d'environ 200 K sur la température de flamme maximale pour une flamme de diffusion et d'approximativement 180 K pour une richesse de 2,5. Pour les profils d'H₂O et de CO₂, une augmentation de la concentration centrale était observée lorsque la perte locale de chaleur par radiation était importante. L'influence de la radiation sur les concentrations d'H₂O et de CO₂ était toutefois négligeable jusqu'à ce que la concentration maximale soit atteinte, et ce, autant pour la flamme de diffusion que pour la flamme partiellement prémélangée.

Comme peu de travaux ont été effectués sur l'influence de la radiation dans les flammes laminaires, deux études sur les flammes turbulentes (Bidi, Hosseini et Nobari, 2008; Habibi, Merci et Roekaerts, 2007) ont également été analysées dans le but de mieux cerner les effets de la radiation et ainsi conclure sur sa présence dans les flammes laminaires. En somme, pour les deux études, les résultats numériques incluant la radiation étaient plus près des résultats expérimentaux autant au niveau des espèces chimiques principales (CH₄, O₂, N₂, CO₂ et H₂O) que de la température de flamme. Bidi *et al.* (2008) ont observé que l'inclusion du phénomène de la radiation entraînait une diminution de la température de flamme ainsi

qu'une augmentation de la zone de haute température. De plus, ils ont mentionné que la température de la flamme commençait à augmenter plus loin de la sortie du brûleur avec la radiation. Pour les profils axiaux des espèces chimiques principales, la radiation avait peu d'influence sur le N_2 tandis que l' O_2 réagissait plus tard dans la flamme. Pour les produits de la combustion, l' H_2O se produisait plus tôt tandis que le CO_2 se formait plus loin. Contrairement à Bidi *et al.* (2008), Habibi *et al.* (2007) ont observé que la température de flamme le long de l'axe central restait similaire jusqu'à une hauteur égale à 30 fois le diamètre du brûleur. Plus haut dans la flamme, la température était plus basse avec la radiation. Le même phénomène a également été observé pour les profils axiaux d' H_2O et de CO_2 . Les observations rapportées par Habibi *et al.* (2007) étaient très similaires à celles de Claramunt *et al.* (2004) pour une flamme laminaire.

3.2.3 Conclusion

Cette revue de littérature illustre un manque au niveau de la validation des différents mécanismes H_2/CO proposés lors de la simulation d'une flamme. Par contre, les mécanismes ont été validés par rapport à plusieurs variables (vitesse de flamme, température d'auto-inflammation, etc.), ce qui permet de passer à l'étape de validation en simulations complexes 2-D et 3-D de flammes. En effet, aucun modèle numérique n'a été produit dans le but de comparer les profils expérimentaux des espèces chimiques principales et de la température de flamme pour des mélanges H_2/CO . De plus, comme la perte de chaleur par radiation est importante lors de la combustion d'hydrocarbures, l'influence de ce phénomène pour les mélanges H_2/CO sera également considérée, car le CO_2 et l' H_2O , espèces importantes dans le phénomène de perte de chaleur par radiation, sont produits en grandes concentrations. L'objectif principal consiste donc à produire un modèle numérique pour une flamme laminaire partiellement prémélangée d'un carburant composé d'hydrogène et de monoxyde de carbone ainsi qu'à comparer la qualité des prédictions à des données expérimentales. Afin d'atteindre cet objectif, les sous-objectifs suivants sont définis :

1. Comparer les résultats numériques obtenus pour la température de flamme et les espèces chimiques principales selon différents mécanismes H_2/CO ;

2. Observer l'effet de la radiation sur la température de flamme et les espèces chimiques majeures;
3. Valider le modèle numérique sur une grande plage de ratios H_2/CO .

L'originalité de la présente section relève du fait qu'aucun modèle numérique n'a été validé pour étudier les flammes laminaires composées d' H_2 et de CO . De plus, il n'existe aucune étude comparative des différents mécanismes H_2/CO pour la prédiction en simulation numérique d'une flamme laminaire ou turbulente. La création ainsi que la validation d'un modèle numérique pour les carburants synthétiques pourraient permettre éventuellement de faire varier d'autres paramètres, tels que la température initiale ainsi que la pression du mélange, dans le but d'observer les variations sur la production des différentes espèces chimiques et sur la température de flamme ainsi que sur les prédictions de NO_x pour lesquels les modèles cinétiques sont déjà établis.

3.3 Méthodologie expérimentale

Trois montages expérimentaux ont été utilisés afin d'obtenir les données nécessaires pour comparer les valeurs expérimentales à celles numériques. En ce qui concerne les espèces chimiques majeures ainsi que la température de flamme, les montages expérimentaux utilisés sont ceux décrits aux Sections 2.3.2 et 2.3.3, respectivement.

La Figure 3.1 présente le montage expérimental utilisé pour obtenir une image qualitative de l'espèce chimique OH . Les images ont été enregistrées à l'aide d'une caméra à dispositif à transfert de charge (LaVision, 1 376 x 1 040 pixels, taille du pixel : 6,45 μm x 6,45 μm) couplée à un intensificateur de signal. De plus, une lentille UV (f/4,5) ainsi qu'un filtre passe-bande centré à une longueur d'onde de 310 nm (Omega Optical 310BP10) étaient positionnés en avant de la caméra. L'image qualitative de chimioluminescence du OH était obtenue en accumulant 200 images instantanées.

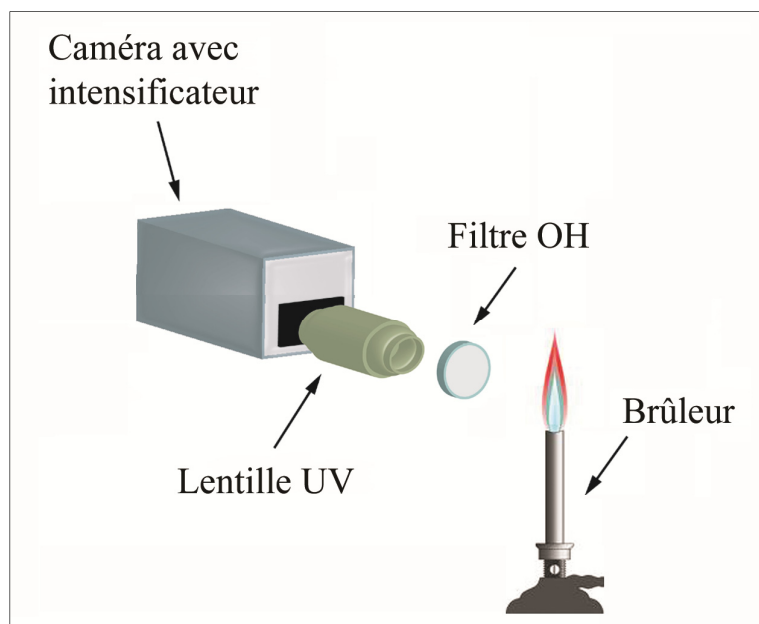


Figure 3.1 Montage expérimental servant à mesurer la concentration d'OH par chimioluminescence

Toutefois, l'image de chimioluminescence obtenue représente la luminosité 3-D rapportée en 2-D à l'aide de la caméra. Il est donc nécessaire de traiter l'image afin d'extraire une coupe 2-D de la répartition du OH au centre de la flamme en se basant sur l'émission maximale du OH. Une technique fréquemment utilisée est la transformée d'Abel en trois points, expliquée en détail par Dasch (1992). Pour exécuter cette technique, l'ensemble *Netpbm* (Henderson, 2009), contenant plus de 200 programmes de manipulation d'images graphiques, a été employé. Le programme principal utilisé pour effectuer la transformée d'Abel s'intitule *pgmabel* (Schmidt, 2002). Le fichier d'entrée du programme est une image PGM représentant un objet symétrique sur 360 degrés, transparent et qui possède un axe vertical de symétrie, soit l'image OH obtenue à l'aide du montage expérimental. Deux programmes doivent toutefois être utilisés pour convertir l'image Bitmap obtenue à l'aide du logiciel LaVision en format PGM. Tout d'abord, le programme *bmptopnm* (Sanderson, 2010) permet de convertir le fichier Bitmap en fichier texte représentant l'image en couleur. Par la suite, le programme *ppmtopgm* est utilisé pour transformer le fichier texte en une image sur une échelle de gris. Le fichier de sortie du programme *pgmabel* (Schmidt, 2002) est un fichier

pgm représentant une coupe 2-D de l'image OH. Ce fichier de sortie est ensuite converti en format *tif* et finalement transformé en une image couleur à l'aide de *Matlab*.

3.4 Modèle numérique

Un modèle numérique a été développé à l'aide du logiciel commercial FLUENT 6.3 (2006) dans le but de reproduire une flamme laminaire partiellement prémélangée ($\phi = 3$) d'un carburant composé de 50% d' H_2 et de 50% de CO.

3.4.1 Équations

Pour modéliser numériquement une flamme laminaire partiellement prémélangée, les équations de conservation de masse, de quantité de mouvement, d'énergie et des espèces chimiques doivent être résolues et sont présentées ci-après en coordonnées cylindriques pour un système en régime permanent. L'Équation 3.1 (Turns, 2000) représente la conservation de la masse et exprime que le taux de variation net du débit massique par unité de volume est nul :

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (3.1)$$

Dans l'Équation 3.1, ρ est la densité, \mathbf{u} est le vecteur de la vitesse et $\nabla \cdot$ est la divergence de la variable. L'Équation 3.2 (Poinsot et Veynante, 2005) représente la conservation de la quantité de mouvement, où μ représente la viscosité dynamique, ∇ est le gradient de la variable, P est la pression et \mathbf{g} est le vecteur de la gravité.

$$\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u}) = -\nabla P + \mu \nabla^2 \mathbf{u} + (\rho_\infty - \rho)\mathbf{g} \quad (3.2)$$

L'Équation 3.3 (Poinsot et Veynante, 2005) représente l'équation d'énergie, où h_s est l'enthalpie totale, $\dot{\omega}_T$ est le terme source de dégagement de chaleur dû à la combustion exprimé selon l'Équation 3.4 (Poinsot et Veynante, 2005), $\lambda \nabla T$ est le terme de l'équation de

la chaleur selon la loi de Fourier, avec λ étant le coefficient de conductivité thermique, $h_{s,k}(-D_k \nabla Y_k)$ est le flux laminaire diffusif de l'enthalpie totale de l'espèce k , avec D_k étant le coefficient de diffusivité thermique de l'espèce k et Y_k , la fraction massique de l'espèce k , τ_{ij} est le tenseur de viscosité exprimé selon l'Équation 3.5 (Panton, 1996), où les indices i et j représentent l'axe r ou z , \dot{Q} est le terme source de chaleur (utilisé ici pour calculer les pertes de chaleur par radiation), $f_{k,i}$ sont les forces volumiques agissant sur l'espèce k , telle que la gravité g .

$$\rho h_s(\nabla \cdot \mathbf{u}) = \dot{\omega}_T + \nabla(\lambda \nabla T) - \nabla \left(\rho \sum_{k=1}^N h_{s,k}(-D_k \nabla Y_k) \right) + \tau_{ij}(\nabla \cdot \mathbf{u}) + \dot{Q} + \rho \sum_{k=1}^N f_{k,i}(-D_k \nabla Y_k) \quad (3.3)$$

$$\dot{\omega}_T = - \sum_{k=1}^N \Delta h_{f,k}^\circ \dot{\omega}_k \quad (3.4)$$

$$\tau_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} - \frac{2}{3}(\nabla \cdot \mathbf{u}) \right) \quad (3.5)$$

Le modèle laminaire du transport des espèces avec réactions volumétriques a été utilisé avec une cinétique chimique incluant des taux de réaction chimique finis. L'Équation 3.6 (Poinso et Veynante, 2005) présente la conservation des espèces, où $D_k \nabla Y_k$ est le flux laminaire diffusif de l'espèce k et $\dot{\omega}_k$ est le taux de réaction de l'espèce k :

$$\rho Y_k(\nabla \cdot \mathbf{u}) = \nabla(\rho D_k \nabla Y_k) + \dot{\omega}_k \quad (3.6)$$

Le module KINetics de Reaction Design a été utilisé afin de modéliser les espèces chimiques présentes dans la flamme. Quatre mécanismes H_2/CO différents ont été considérés et sont présentés dans le Tableau 3.3. De plus, les réactions utilisées dans chacun des mécanismes sont présentées à l'Annexe V. Ces mécanismes ont été choisis à la suite de l'élaboration de la revue de littérature dans le but de voir l'impact des différences entre les divers mécanismes

sur la prédiction des espèces chimiques et de la température de flamme. Le mécanisme de Davis *et al.* (2005) possède 30 réactions ainsi que 14 espèces différentes et est utilisé fréquemment dans la littérature à titre de comparaison avec les résultats expérimentaux sur la vitesse de flamme laminaire. Le mécanisme de Saxena et Williams (2006) possède également 30 réactions et 14 espèces. Toutefois, les valeurs des termes permettant de calculer le taux de production/destruction des différentes espèces varient. De plus, comparativement au mécanisme de Davis *et al.* (2005), la réaction $\text{CO} + \text{O} + \text{M} = \text{CO}_2 + \text{M}$ a été éliminée tandis que la réaction $\text{O} + \text{OH} + \text{M} = \text{HO}_2 + \text{M}$ a été ajoutée. Cette comparaison entre les mécanismes permettra donc d'observer si ces différences ont une influence. Par la suite, le mécanisme de Sun *et al.* (2007) a été sélectionné puisqu'il inclut l'addition d'une nouvelle espèce, soit CH_2O , ainsi que trois nouvelles réactions comparativement au mécanisme de Davis *et al.* (2005). Finalement, le mécanisme réduit basé sur celui de Saxena et Williams (2006), proposé par Boivin *et al.* (2011), a été inclus puisque la réduction du nombre de réactions devrait permettre de diminuer le temps de simulation et qu'il est essentiel d'évaluer si la qualité des prédictions en est perturbée.

Tableau 3.3 Mécanismes de chimie étudiés

Mécanisme	Nombre d'espèces	Nombre de réactions
Davis <i>et al.</i> (2005)	14	30
Saxena et Williams (2006)	14	30
Sun <i>et al.</i> (2007)	15	33
Boivin <i>et al.</i> (2011)	14	16

Afin d'utiliser le module KINetics de Reaction Design, trois fichiers doivent être utilisés : le premier regroupe toutes les réactions chimiques; le deuxième contient les données thermodynamiques des espèces permettant de calculer, en fonction de la température, les valeurs des chaleurs spécifiques, des enthalpies et des entropies des espèces présentes; et un dernier contenant les données de transport en phase gazeuse permettant de calculer la diffusion moléculaire, la conductivité thermique et la viscosité.

L'effet de la radiation sur les espèces chimiques ainsi que sur la température de flamme sera étudié pour un des mécanismes. Le modèle de radiation utilisé est celui décrit par Barlow *et al.* (2001) et est résumé ci-après. Le phénomène de radiation pour une flamme a été modélisé en supposant un transfert optiquement mince entre l'air environnant et les espèces chimiques présentes dans la flamme, c'est-à-dire que chaque point ayant une source de radiation possède une vue non-obstruée et isotrope de l'air environnant (Barlow *et al.*, 1999). La perte de chaleur par radiation par unité de volume est calculée selon l'Équation 3.7 (Barlow *et al.*, 2001) :

$$\dot{Q} = 4\sigma_{SB}(T^4 - T_b^4) \sum_k (p_k a_{p,k}) \quad (3.7)$$

Où σ_{SB} est la constante Stefan-Boltzmann ($5,67 \times 10^{-8} \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^4$), T est la température locale de la flamme, T_b est la température de l'air ambiant, p_k est la pression partielle de l'espèce k (en atmosphères) et $a_{p,k}$ est le coefficient d'absorption moyen de Planck de l'espèce k . Seulement les pressions partielles ainsi que les coefficients de Planck pour l' H_2O , le CO_2 et le CO ont été calculés puisque ce sont les espèces principales participant dans les pertes de chaleur par radiation.

3.4.2 Géométrie et conditions aux frontières

La Figure 3.2 présente le domaine axisymétrique en deux dimensions ainsi que les conditions aux frontières utilisées lors de l'exécution des simulations numériques. Le domaine a une largeur de 25,4 mm, soit deux fois le rayon du brûleur, et une hauteur de 100 mm correspondant à environ deux fois la hauteur de la flamme. Les conditions initiales du jet à la sortie du brûleur sont les suivantes : un mélange 50% H_2 / 50% CO avec une richesse de 3 ($Y_{\text{H}_2} = 0,0266$, $Y_{\text{CO}} = 0,3694$, $Y_{\text{O}_2} = 0,1407$ et $Y_{\text{N}_2} = 0,4633$), une vitesse axiale moyenne, $\overline{u_z}$, de 3,77 m/s avec un profil complètement développé, une vitesse radiale, u_r , de 0 m/s, une température initiale, T , de 300 K et une pression initiale, P , de 1 atm. La ligne centrale du brûleur est représentée par un axe de symétrie, ce qui signifie qu'un gradient nul $\left(\frac{\partial \phi}{\partial r}\right)$ est

appliqué à toutes les variables sauf pour u_r , la composante radiale de la vitesse, qui est égale à 0. La paroi du brûleur possède une condition adiabatique pour la température, une condition anti-glissement pour la vitesse et le gradient pour les espèces $\left(\frac{\partial Y_k}{\partial r}\right)$ est égal à 0. Les frontières de gauche et inférieure (petits pointillés) ainsi que la frontière supérieure (pointillés larges) possèdent une condition de pression ($\nabla P = 0$ et $\nabla u = 0$). Les conditions sont celles de l'air atmosphérique qui peut entrer dans le domaine avec une fraction massique d'O₂ de 0,2321, une température de 300 K et une pression de 1 atm. L'influence de la gravité a aussi été incluse dans le modèle.

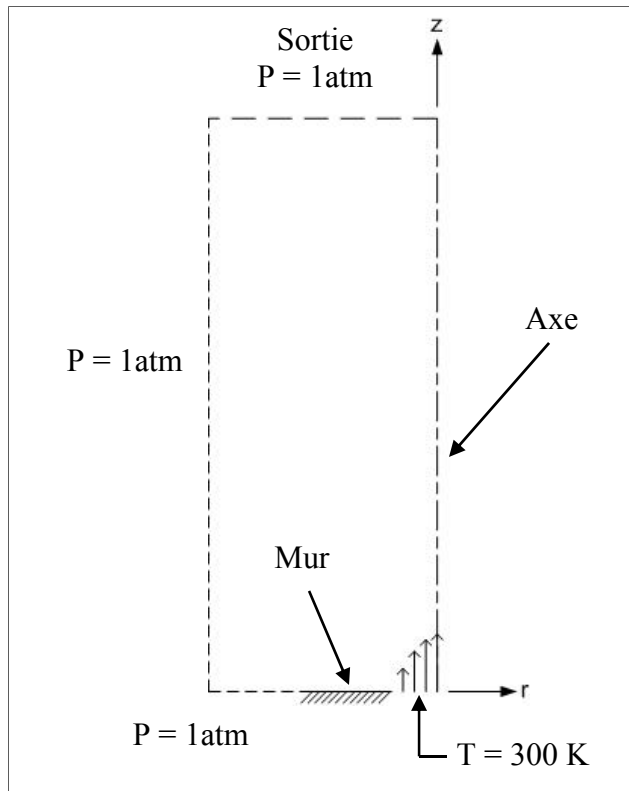


Figure 3.2 Domaine utilisé lors de la simulation

3.4.3 Maillage

Le logiciel Gambit a été utilisé afin de reproduire le domaine et créer le maillage approprié. Le domaine de simulation a été séparé en neuf sections tel qu'illustré à la Figure 3.3. La

section 1, soit la région couvrant la sortie du brûleur jusqu'à une hauteur de 50 mm, a été divisée en utilisant une grille uniforme composée de 15 segments égaux selon l'axe r et de 475 segments égaux selon l'axe z . Chaque segment mesure 0,1 mm similairement à ce qui a été utilisé par Cheng *et al.* (2006) pour une flamme de diffusion d'hydrogène. Pour les sections 2 et 3, la division sur l'axe r reste la même que pour la section 1, mais la division selon l'axe z est exponentielle avec 150 intervalles pour la section 2 et 75 pour la section 3. Pour les sections 4 à 9, la division selon l'axe z correspond à celle attribuée aux sections 1 à 3 tandis que sur l'axe r , une séparation exponentielle a été choisie, soit avec 75 intervalles pour les sections 4 à 6 et 50 intervalles pour les sections 7 à 9.

En somme, le domaine de simulation est divisé en 140 x 700 éléments, ceux-ci étant carrés près du brûleur et rectangulaires en s'éloignant du brûleur. Cette méthode est d'ailleurs utilisée par Cheng *et al.* (2006), Bhadraiah et Raghavan (2011) et Claramunt *et al.* (2004). Dans la direction radiale, la dimension minimale du maillage près de la sortie du brûleur est de 0,1 mm tandis que l'espace maximal dans la région plus éloignée est de 0,25 mm. Dans la direction axiale, la distance minimale est également de 0,1 mm près du brûleur et elle augmente jusqu'à une distance de 0,33 mm à l'extrémité du domaine.

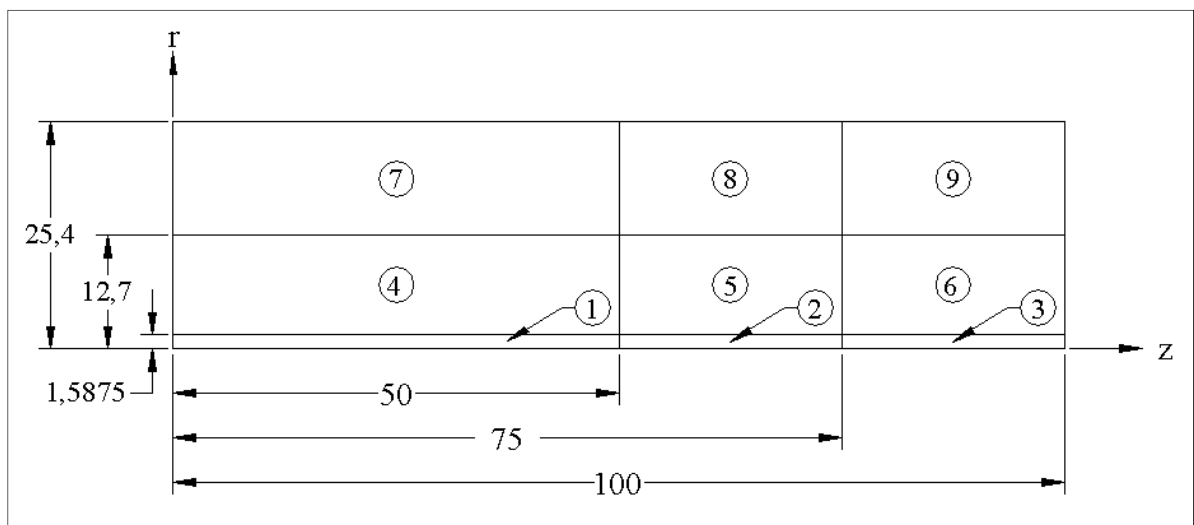


Figure 3.3 Domaine utilisé lors de la simulation

3.4.4 Procédure de solution

Pour résoudre les équations énumérées précédemment, FLUENT peut utiliser différentes méthodes de discrétisation. Par défaut, FLUENT calcule les valeurs des variables ϕ au centre de chacune des cellules. Toutefois, pour les termes de convection, les valeurs sur la face de la cellule sont requises et celles-ci sont dérivées à partir de la cellule supérieure selon le sens de la vitesse normale. La méthode de deuxième ordre est souvent conseillée puisqu'elle permet d'obtenir une meilleure précision, mais la complexité du modèle de simulation pourrait par contre empêcher d'obtenir une solution convergée. Pour le cas présent, un schéma de premier ordre a tout d'abord été utilisé pour démarrer la simulation. Ce schéma est caractérisé par le fait que pour toutes les variables ϕ , la valeur attribuée aux faces est égale à celle au centre de la cellule, ce qui simplifie le calcul. Par la suite, le schéma de deuxième ordre, dans lequel une approche de reconstruction linéaire multidimensionnelle est utilisée, a été sélectionné.

Une fois que les équations sont discrétisées, la prochaine étape consiste à utiliser un solveur découplé qui permet de résoudre les équations de façon itérative, car celles-ci ne sont pas linéaires. Pour amorcer le processus, les valeurs des espèces chimiques, de la température et de la vitesse sont initialisées à des valeurs constantes sur l'ensemble du domaine de simulation dans le but d'établir un champ de pression préliminaire. Par la suite, avec ce champ de pression, l'équation de quantité de mouvement (Équation 3.2) est résolue et le résultat est un champ de vitesse qui permettra de résoudre l'équation de continuité (Équation 3.1). Toutefois, pour résoudre cette équation, l'utilisation de l'algorithme SIMPLE s'avère nécessaire. En effet, puisque la pression n'est pas présente directement dans l'équation de continuité, cet algorithme permet de transformer l'équation de continuité en une équation qui aura pour résultat un champ de pression obtenu à partir du champ de vitesse.

En somme, pour résoudre le problème à l'étude, le cas de l'écoulement à froid a tout d'abord été résolu pour 10 000 itérations, soit jusqu'à ce qu'une convergence d'approximativement 1×10^{-4} ait été atteinte. Par la suite, la simulation de combustion du mélange air-carburant a été amorcée en enflammant le mélange, soit en attribuant une température de 1 500 K dans une

zone située à environ 1 mm de la sortie du brûleur. Cette inflammation est presque instantanée et la simulation se poursuit jusqu'à ce que le critère de convergence pour toutes les équations soit inférieur à 1×10^{-6} . En moyenne, la convergence a eu lieu autour de 36 000 itérations. Pour étudier l'influence de la radiation, le calcul a été débuté à partir de la solution convergée et le cas a été lancé de nouveau jusqu'à ce que le critère de convergence se retrouve encore une fois sous 1×10^{-6} , soit pour environ 10 000 itérations.

3.4.5 Validation du modèle

La validation du modèle numérique a été effectuée en appliquant tout d'abord la méthode « Grid Convergence Method » (GCI) à trois maillages différents dans le but de connaître l'incertitude associée au raffinement du maillage. Cette méthode sera présentée en détail dans la prochaine section. Par la suite, le modèle a été validé à froid au niveau de la vitesse de l'écoulement en comparant les vitesses numériques axiales à celles obtenues expérimentalement à l'aide d'une sonde anémométrique à fil chaud. Finalement, les espèces chimiques et les températures obtenues à l'aide de la spectroscopie ont été comparées aux profils radiaux obtenus numériquement. Pour chacune des validations, la méthode GCI a été appliquée.

3.4.5.1 Méthode GCI

La méthode GCI a été établie par Celik *et al.* (2008) dans le but de normaliser l'estimation et le rapport de l'incertitude dus au raffinement du maillage. Cette méthode permet donc de comparer trois maillages différents entre eux afin de caractériser l'erreur associée au choix du maillage. Cinq étapes permettent de calculer cette incertitude :

1. Il faut choisir trois maillages (grossier, moyen et fin) ayant un nombre total de cellules différent. Pour chaque maillage, une grandeur de maille typique h est définie selon l'Équation 3.8, où N représente le nombre total de cellules et ΔA_i , l'aire de la i ème cellule :

$$h = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\Delta A_i) \right]^{1/2} \quad (3.8)$$

Pour valider les trois maillages, il faut s'assurer que $h_1 < h_2 < h_3$ et que le facteur de raffinement r entre les maillages soit toujours plus grand que 1,3. La valeur de r est obtenue selon l'Équation 3.9 :

$$r = h_{grossier} / h_{fin} \quad (3.9)$$

Une fois les maillages déterminés, il faut obtenir les valeurs numériques des variables importantes \emptyset , telles que la vitesse axiale, la température et les concentrations des espèces chimiques, sur tout le domaine.

2. Il faut calculer l'ordre apparent p de la méthode à l'aide de l'Équation 3.10, où $q(p)$ se définit selon les Équations 3.11 et 3.12 :

$$p = \frac{1}{\ln(r_{21})} |\ln|\varepsilon_{32}/\varepsilon_{21}| + q(p)| \quad (3.10)$$

$$q(p) = \ln \left(\frac{r_{21}^p - s}{r_{32}^p - s} \right) \quad (3.11)$$

$$s = 1 \cdot \text{sgn}(\varepsilon_{32}/\varepsilon_{21}) \quad (3.12)$$

Dans les Équations 3.11 et 3.12, $\varepsilon_{32} = \emptyset_3 - \emptyset_2$, $\varepsilon_{21} = \emptyset_2 - \emptyset_1$, $r_{32} = h_3/h_2$ et $r_{21} = h_2/h_1$. L'Équation 3.10 peut être résolue par itération en supposant $q(p) = 0$ lors de la première itération. Des valeurs négatives pour $\varepsilon_{32}/\varepsilon_{21}$ peuvent entraîner une convergence oscillatoire du processus itératif. En général, l'ordre apparent p observé doit concorder avec l'ordre du schéma de résolution des équations du logiciel employé. Dans le présent cas, l'ordre apparent p observé devrait se situer autour de 2 puisque le schéma utilisé pour résoudre les équations dans Fluent est un schéma de 2^e ordre.

3. À la suite de l'obtention de l'ordre apparent p , la valeur extrapolée de la variable considérée ϕ est calculée selon l'Équation 3.13 :

$$\phi_{ext}^{21} = (r_{21}^p \phi_1 - \phi_2) / (r_{21}^p - 1) \quad (3.13)$$

4. L'erreur relative approximée et l'erreur relative extrapolée peuvent être estimées selon les Équations 3.14 et 3.15, respectivement :

$$e_a^{21} = \left| \frac{\phi_1 - \phi_2}{\phi_1} \right| \quad (3.14)$$

$$e_{ext}^{21} = \left| \frac{\phi_{ext}^{21} - \phi_1}{\phi_{ext}^{21}} \right| \quad (3.15)$$

5. Finalement, l'indice de convergence du maillage, soit l'incertitude associée aux résultats obtenus avec le maillage moyen comparativement au maillage fin, est obtenu selon l'Équation 3.16 :

$$GCI_{fin}^{21} = \frac{1.25 e_a^{21}}{r_{21}^p - 1} \quad (3.16)$$

Celik *et al.* (2008) recommandent d'indiquer l'incertitude numérique, soit GCI_{fin} , obtenue à l'aide de la méthode de même que la valeur moyenne de p afin de mesurer l'ordre global de l'exactitude des résultats numériques. De plus, si possible, ils recommandent d'inclure le pourcentage d'occurrence de la convergence oscillatoire. Cette oscillation est principalement obtenue lorsque les valeurs acquises avec les maillages grossier et fin sont supérieures à la valeur obtenue avec le maillage moyen, indiquant ainsi un résultat oscillant autour de la réponse exacte.

Pour le cas présent, les trois maillages choisis étaient composés de 26 208 nœuds, de 98 841 nœuds et de 223 024 nœuds. Le Tableau 3.4 regroupe les valeurs de N , h et r obtenues à

l'aide de ces trois maillages. On peut remarquer que $h_1 < h_2 < h_3$ et que $h_{grossier} / h_{fin}$ est plus grand que 1,3, ce qui répond aux critères de la méthode.

Tableau 3.4 Valeurs des variables caractéristiques des trois maillages

Variable	Valeur
N_1, N_2, N_3	223 024, 98 841, 26 208
h_1, h_2, h_3 (μm)	106,72, 160,31, 311,31
r_{21}	1,5
r_{32}	1,94

3.4.5.2 Validation à froid

Afin de valider l'écoulement à froid, des mesures expérimentales de la vitesse ont tout d'abord été prises à différentes hauteurs au-dessus du brûleur à l'aide d'une sonde anémométrique à fil chaud. D'ailleurs, pour chaque point de mesure, la moyenne et l'écart-type ont été calculés à partir de dix points mesurés consécutivement. La Figure 3.4 présente la variation de la vitesse expérimentale selon l'axe axial de même que les résultats obtenus lors de la simulation numérique. La méthode CGI décrite précédemment a été appliquée aux résultats numériques. La valeur de p se situe entre 0,015 et 11,07 avec une valeur moyenne se situant à 1,4, ce qui est comparable aux valeurs rapportées par Celik *et al.* (2008). L'incertitude maximale de la vitesse axiale obtenue numériquement est de 4,7%.

Selon les résultats de la Figure 3.4, les mesures expérimentales concordent bien à celles obtenues numériquement jusqu'à une hauteur de 7 cm au dessus du brûleur. Par la suite, la vitesse expérimentale est plus basse que celle numérique, ce qui peut toutefois être expliqué par la difficulté de situer la sonde exactement dans l'axe central du brûleur.

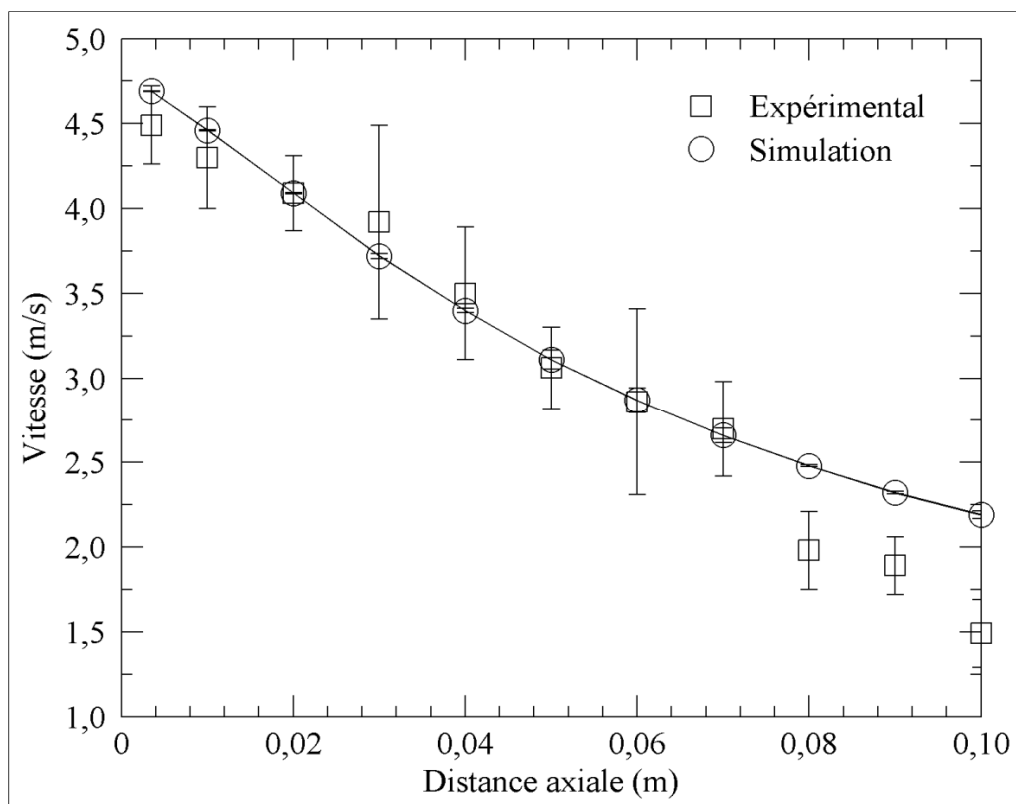


Figure 3.4 Comparaison de la vitesse expérimentale et numérique pour différentes hauteurs

3.4.5.3 Validation à chaud

La Figure 3.5 présente une comparaison entre les résultats numériques obtenus à l'aide du mécanisme de Davis *et al.* (2005) et ceux expérimentaux de la variation radiale des espèces chimiques principales à des hauteurs de flamme de 6, 13, 25 et 38 mm, ce qui correspond à 10%, 20%, 40% et 60% de la hauteur de flamme. On peut observer que les résultats sont très similaires pour toutes les distances axiales sauf au niveau du CO_2 à $z/H_T = 10\%$. En effet, seulement pour cette hauteur, les valeurs numériques jusqu'à une distance radiale de 3 mm sous-estiment les valeurs expérimentales. Toutefois, à $z/H_T = 20\%$ et 40% , les résultats numériques concordent bien avec ceux obtenus expérimentalement.

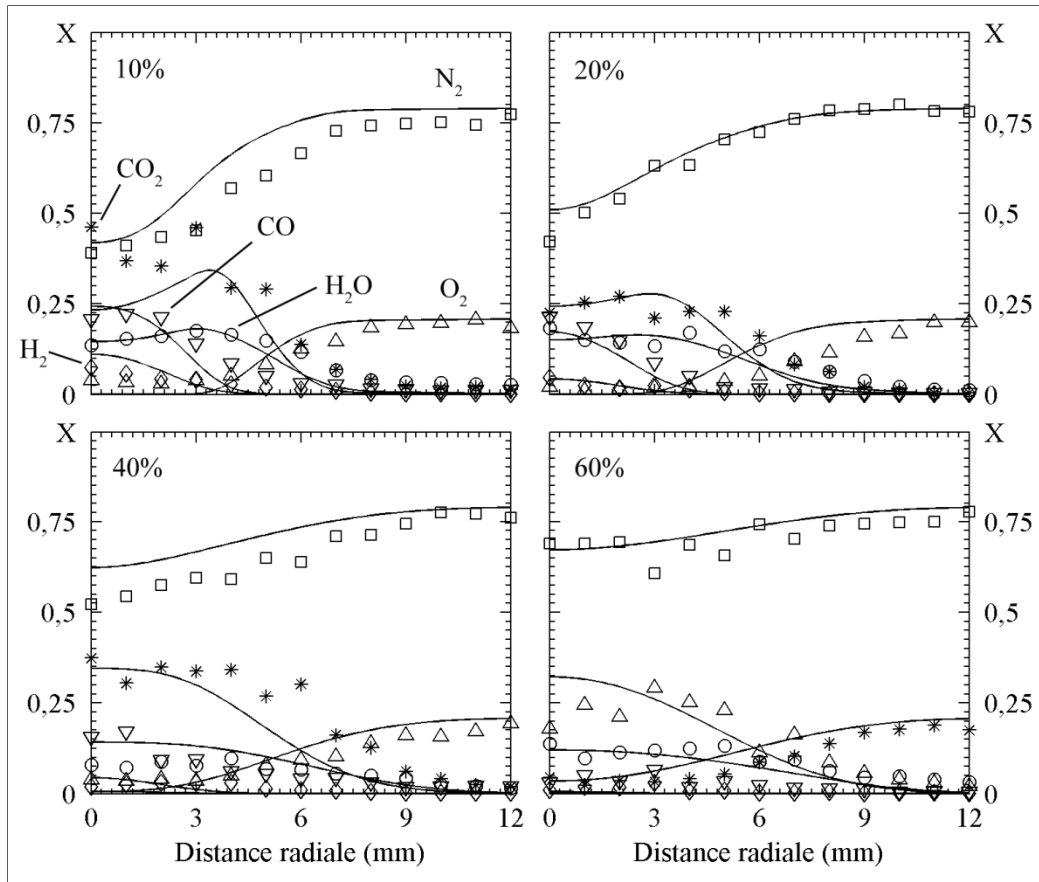


Figure 3.5 Comparaison entre les résultats expérimentaux ($\square = N_2$, $\Delta = O_2$, $\circ = H_2O$, $\diamond = H_2$, $\nabla = CO$, $* = CO_2$) et ceux numériques (lignes) à différentes hauteurs de flamme

La Figure 3.6 présente une comparaison entre les résultats numériques obtenus à l'aide du mécanisme de Davis *et al.* (2005) et ceux expérimentaux pour la température de flamme à différentes hauteurs de flamme. On peut observer que les résultats numériques surestiment la température de flamme, ce qui peut être justifié par l'absence d'un modèle tenant compte de la perte de chaleur due à la radiation de certaines espèces chimiques. L'effet de la radiation sera évalué dans la Section 3.5.

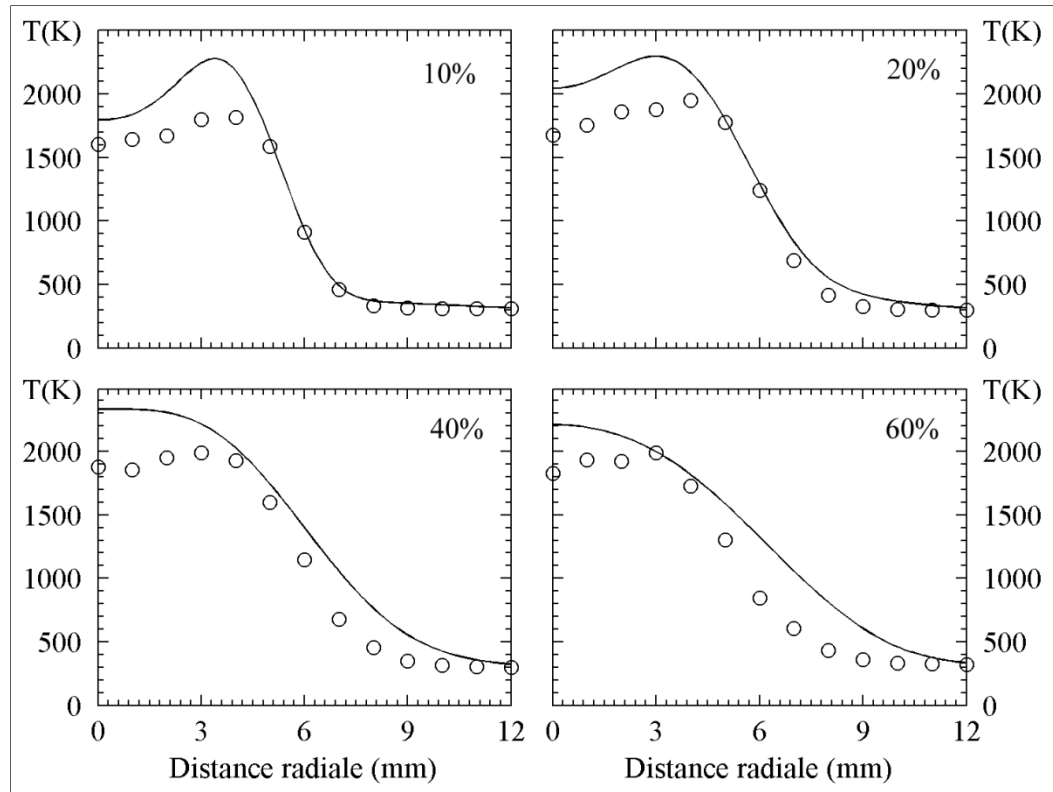


Figure 3.6 Variation radiale de la température de flamme à différentes hauteurs; les symboles représentent les résultats expérimentaux et les lignes représentent les résultats numériques de Davis *et al.* (2005)

La méthode GCI a également été appliquée pour les résultats des espèces chimiques majeures ainsi que pour la température de flamme. Pour quatre hauteurs, soit z/H_T 10%, 20%, 40% et 60%, 16 points ont été évalués, soit à tous les millimètres de 0 à 15 mm. Le Tableau 3.5 présente les valeurs calculées à l'aide de la méthode GCI pour l'ordre apparent moyen (p_{moyen}) et l'indice de convergence moyen (GCI_{moyen}) ainsi que le pourcentage de points dont la convergence est oscillatoire. Cette convergence oscillatoire est d'ailleurs principalement obtenue pour les points où les valeurs acquises avec les maillages grossier et fin sont supérieures à la valeur obtenue avec le maillage moyen, ce qui indique que le résultat oscille autour de la réponse exacte.

Tableau 3.5 Valeurs associées à la méthode GCI

Hauteur		H ₂	CO	H ₂ O	CO ₂	N ₂	O ₂	Temp.
6 mm (10%)	p_{moyen}	1,86	1,41	2,00	1,67	2,07	1,68	1,19
	$GCI_{moy.} (%)$	5,12	5,67	2,72	5,66	0,65	1,02	1,28
	% oscillation	6,25	6,25	12,50	12,50	6,25	0,00	6,25
13 mm (20%)	p_{moyen}	1,56	1,34	4,07	1,20	1,74	1,56	1,17
	$GCI_{moy.} (%)$	3,98	9,42	1,83	6,36	2,10	0,10	0,43
	% oscillation	6,25	0,00	25,00	0,00	12,50	37,50	37,50
25 mm (40%)	p_{moyen}	1,84	1,02	8,74	3,90	4,25	3,62	4,17
	$GCI_{moy.} (%)$	6,05	13,16	3,23	10,29	0,61	0,05	0,49
	% oscillation	0,00	0,00	0,00	12,50	0,00	0,00	6,25
38 mm (60%)	p_{moyen}	2,62	1,66	2,61	2,37	4,19	1,95	4,42
	$GCI_{moy.} (%)$	4,14	17,93	3,69	6,50	0,23	0,02	0,32
	% oscillation	12,50	0,00	25,00	0,00	0,00	31,25	0,00

Dans le Tableau 3.5, on remarque pour l'ensemble des mesures que l'incertitude associée à la température est inférieure à 1,28% et qu'elle tend à diminuer en s'éloignant du brûleur, ce qui n'est pas tout à fait le cas avec l'incertitude sur les espèces qui semble demeurer plutôt constante ou augmenter en s'éloignant du brûleur. En ce qui concerne l'ordre apparent p_{moyen} , celui-ci devrait être proche de 2 puisque les équations résolues par FLUENT 6.3 (2006) sont du 2^e ordre, mais certaines valeurs sont toutefois plus élevées. Ces dernières sont d'ailleurs principalement observées lorsque la différence entre le résultat du maillage moyen et celui du maillage fin est presque nulle ou lorsque la différence entre le maillage grossier et le maillage moyen est plus petite que celle entre le maillage moyen et le maillage fin. Dans l'ensemble, le maillage moyen est donc satisfaisant et sera utilisé pour la suite des travaux.

3.5 Résultats et discussion

Tout d'abord, trois différents mécanismes H_2/CO complets ont été utilisés avec le modèle numérique présenté à la Section 3.4 dans le but d'étudier les effets sur la distribution des espèces chimiques majeures et de la température de flamme. Un quatrième mécanisme, soit un mécanisme réduit obtenu à partir d'un des trois mécanismes principaux, a également été inclus afin d'observer si celui-ci pouvait être utilisé pour réduire le temps de simulation tout en maintenant la qualité des prédictions. Par la suite, à l'aide du mécanisme choisi, l'influence de la radiation sur les résultats numériques des espèces chimiques principales et de la température est également étudiée. Finalement, le modèle numérique est validé sur une grande plage de carburants H_2/CO .

3.5.1 Influence des mécanismes de chimie

La Figure 3.7 présente les profils radiaux numériques à $z/H_T = 10\%$ pour la température de flamme et les fractions molaires des espèces chimiques majeures. Les résultats numériques obtenus à l'aide des mécanismes de Davis *et al.* (2005) (ligne noire), de Saxena et Williams (2006) (ligne bleue) et de Boivin *et al.* (2011) (ligne verte) convergent tous vers les mêmes valeurs. Pour raison de clarté, les résultats expérimentaux ont été omis, mais sont présents aux Figures 3.5 et 3.6. Comme mentionné précédemment, seulement deux différences au niveau des réactions chimiques ont été observées en comparant les mécanismes de Davis *et al.* (2005) et de Saxena et Williams (2006). Lorsque Saxena et Williams (2006) ont développé leur mécanisme, la réaction $CO + O + M = CO_2 + M$, présente dans le mécanisme de Davis *et al.* (2005), a été retirée tandis que la réaction $O + OH + M = HO_2 + M$, absente dans le mécanisme de Davis *et al.* (2005), a été ajoutée. De plus, les paramètres permettant de calculer les taux de production/destruction des espèces chimiques ont été révisés sur la base de travaux récents d'autres chercheurs. Ces différences ne semblent toutefois avoir aucune influence sur les résultats des fractions molaires des espèces chimiques principales et de la température de flamme obtenus numériquement.

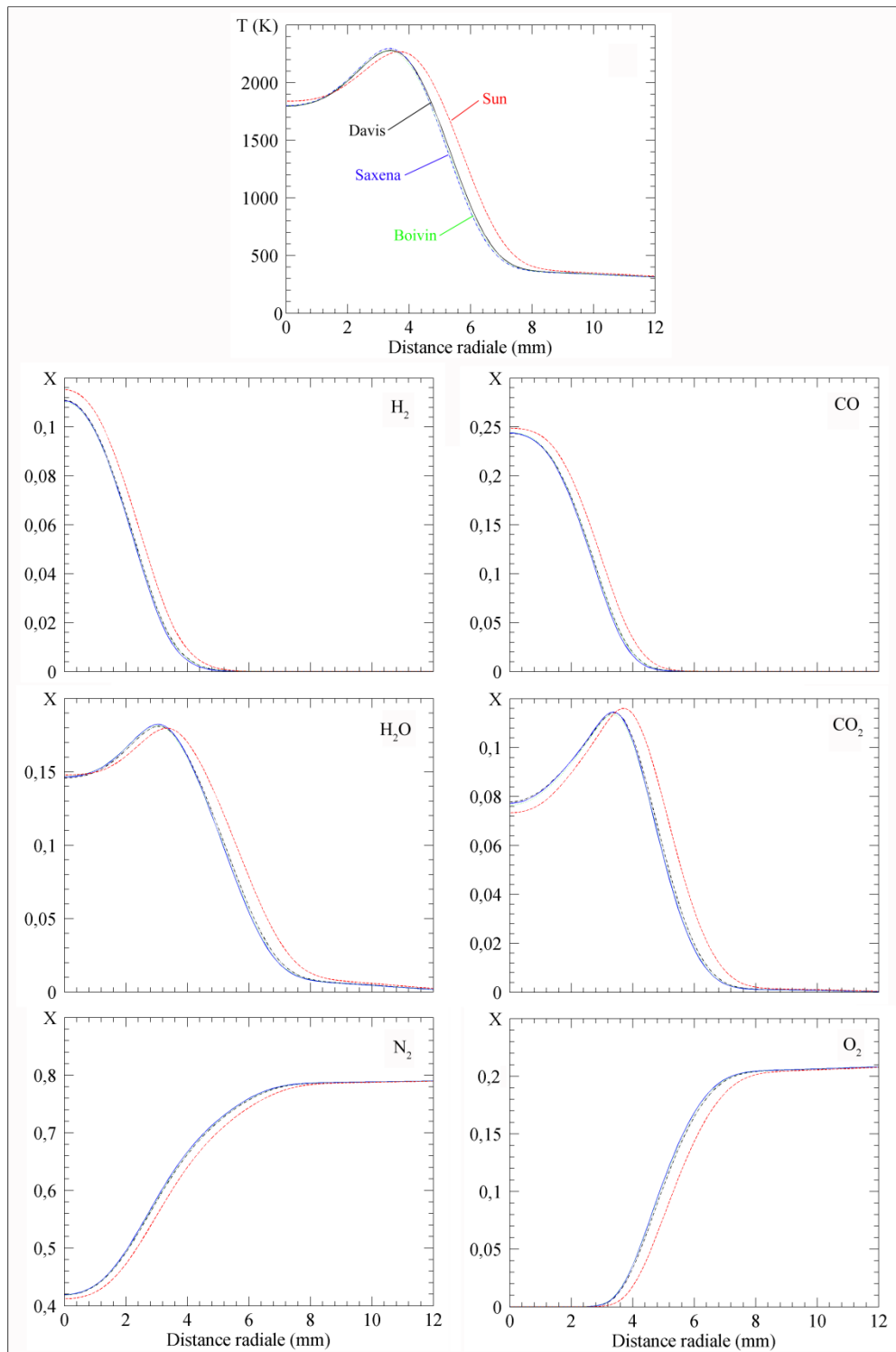


Figure 3.7 Comparaison des profils radiaux numériques à $z/H_T = 10\%$ (noir : Davis *et al.* (2005), bleu : Saxena et Williams (2006), rouge : Sun *et al.* (2007), vert : Boivin *et al.* (2011)) pour les espèces chimiques majeures et la température de flamme

Par contre, le mécanisme de Sun *et al.* (2007) (ligne rouge) a produit des résultats légèrement différents des trois autres mécanismes. Pour ce mécanisme, trois réactions ont été ajoutées à celles du mécanisme de Davis *et al.* (2005), soit $\text{HCO} + \text{HO}_2 = \text{CO}_2 + \text{OH} + \text{H}$, $\text{HCO} + \text{HCO} = \text{H}_2 + \text{CO} + \text{CO}$ et $\text{HCO} + \text{HCO} = \text{CH}_2\text{O} + \text{CO}$. Tout d'abord, au niveau de la température de flamme, celle-ci est plus élevée au centre de la flamme que pour les autres mécanismes. Toutefois, la température maximale obtenue est similaire quoique décalée un peu vers la droite, ce qui laisserait sous-entendre que la flamme serait plus large avec le mécanisme de Sun *et al.* (2007) même si les propriétés physiques des espèces ont été calculées à partir des mêmes données de transport. Ce décalage vers la droite des profils obtenus avec le mécanisme de Sun *et al.* (2007) est d'ailleurs observable pour toutes les espèces chimiques majeures. Deuxièmement, au niveau des espèces H_2 et CO , celles-ci semblent réagir moins rapidement avec le mécanisme de Sun *et al.* (2007) puisque la fraction molaire est plus élevée pour tout le profil radial. Finalement, la quantité d' H_2O produite est similaire malgré le décalage tandis que la production de CO_2 est inférieure au centre de la flamme, mais supérieure en ce qui concerne la quantité maximale produite.

La Figure 3.8 présente les profils radiaux numériques à $z/H_T = 20\%$ pour la température de flamme et les fractions molaires des espèces chimiques majeures dont les données expérimentales des Figures 3.5 et 3.6 ont été omises pour raison de clarté. En comparant les profils de la Figure 3.8 avec ceux de la Figure 3.7, on remarque que l'écart observé entre le mécanisme de Sun *et al.* (2007) et les trois autres mécanismes est moins grand à $z/H_T = 20\%$ qu'à $z/H_T = 10\%$, et ce, pour toutes les espèces majeures ainsi que pour la température de flamme. De plus, si l'on continue d'augmenter z/H_T (Voir Figures-A VI-1 et A VI-2 de l'Annexe VI), on observe que l'écart présent plus proche de la sortie du brûleur devient presque nul. L'ajout des trois réactions énumérées précédemment au mécanisme de Sun *et al.* (2007) ainsi que les modifications apportées aux coefficients d'Arrhenius semblent donc retarder l'apparition de la flamme et le temps nécessaire pour l'auto-inflammation. Par contre, plus loin du brûleur, les résultats numériques des quatre mécanismes sont très similaires indiquant que les modifications jouent un rôle uniquement dans la phase initiale de la combustion et que les concentrations des espèces majeures prédites sont les mêmes.

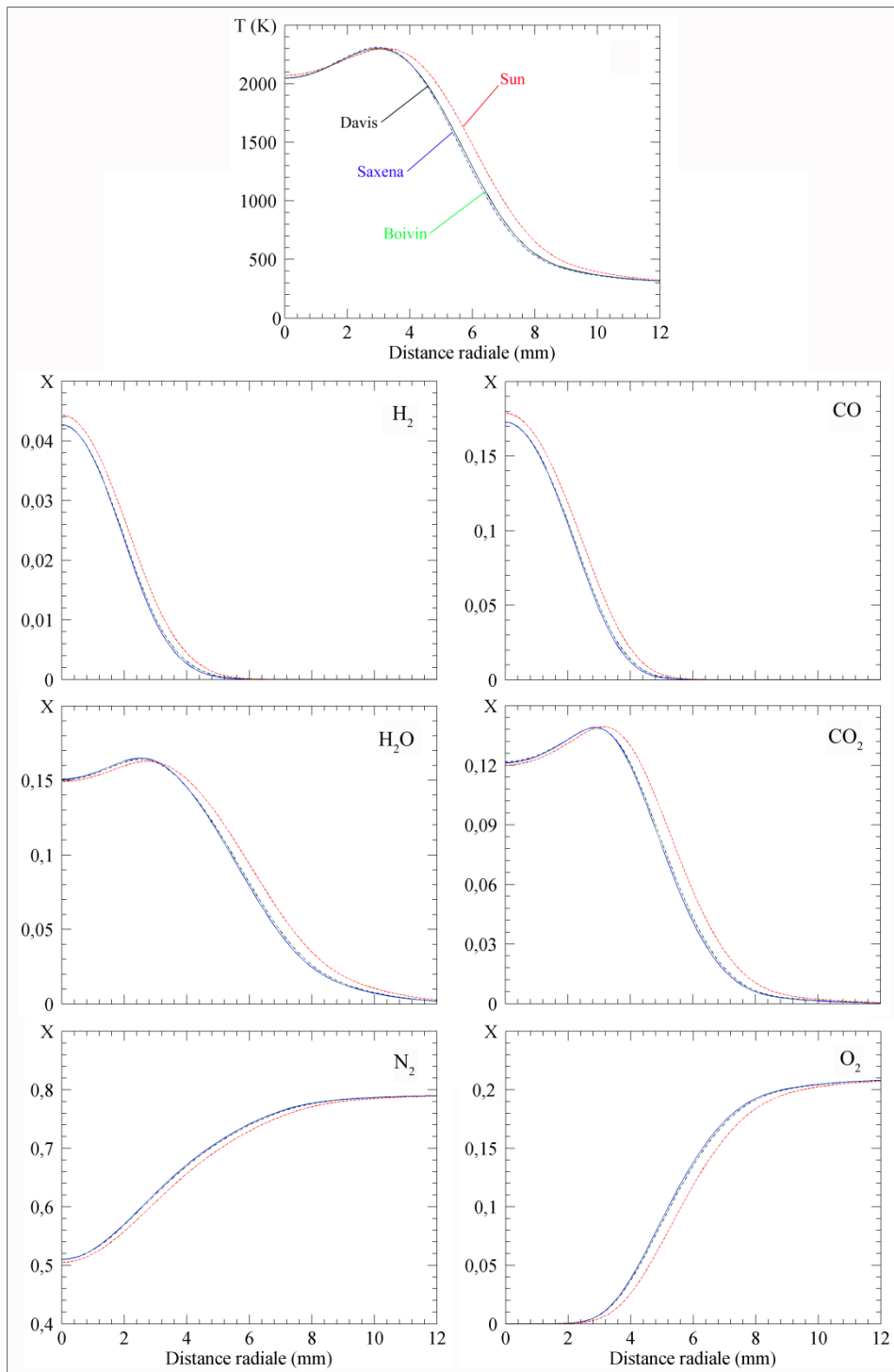


Figure 3.8 Comparaison des profils radiaux numériques à $z/H_T = 20\%$ (noir : Davis *et al.* (2005), bleu : Saxena et Williams (2006), rouge : Sun *et al.* (2007), vert : Boivin *et al.* (2011)) pour les espèces chimiques majeures et la température de flamme

Suivant le fait que les différences sont presque inexistantes entre les mécanismes de Davis *et al.* (2005), de Saxena et Williams (2006) et celui réduit par Boivin *et al.* (2011), les résultats des isocontours seront concentrés principalement sur les différences entre le mécanisme réduit par Boivin *et al.* (2011) et celui de Sun *et al.* (2007). Malheureusement, peu de différences significatives, mises à part celles discutées lors de la présentation des profils radiaux (*Voir* Figures 3.7 et 3.8) ont été observées pour les isocontours de la température, de l'H₂, du CO, de l'O₂ et du N₂. Ceux-ci sont donc présentés à l'Annexe VI. Par contre, pour l'H₂O et le CO₂, quelques observations supplémentaires peuvent être discutées et la Figure 3.9 présente les isocontours obtenus numériquement. Pour l'H₂O (*Voir* Figure 3.9 gauche), on remarque que la zone de concentration maximale près du brûleur est plus grande avec le mécanisme de Sun *et al.* (2007) qu'avec le mécanisme réduit de Boivin *et al.* (2011). Pour ce qui est du CO₂ (*Voir* Figure 3.9 droite), sa formation commence plus tôt sur la périphérie avec le mécanisme de Sun *et al.* (2007), ce qui illustre que les réactions d'oxydation du CO semblent plus rapides avec le mécanisme complet (Sun *et al.*, 2007) qu'avec le mécanisme réduit (Boivin *et al.*, 2011). Par contre, au centre de la flamme, les deux mécanismes donnent des résultats similaires. De plus, avec le mécanisme de Sun *et al.* (2007), la zone de concentration maximale de CO₂ est plus importante comparativement à la zone obtenue avec le mécanisme réduit de Boivin *et al.* (2011), ce qui peut encore une fois s'expliquer par une oxydation plus rapide du CO avec le mécanisme complet (Sun *et al.*, 2007) comparativement au mécanisme réduit (Boivin *et al.*, 2011).

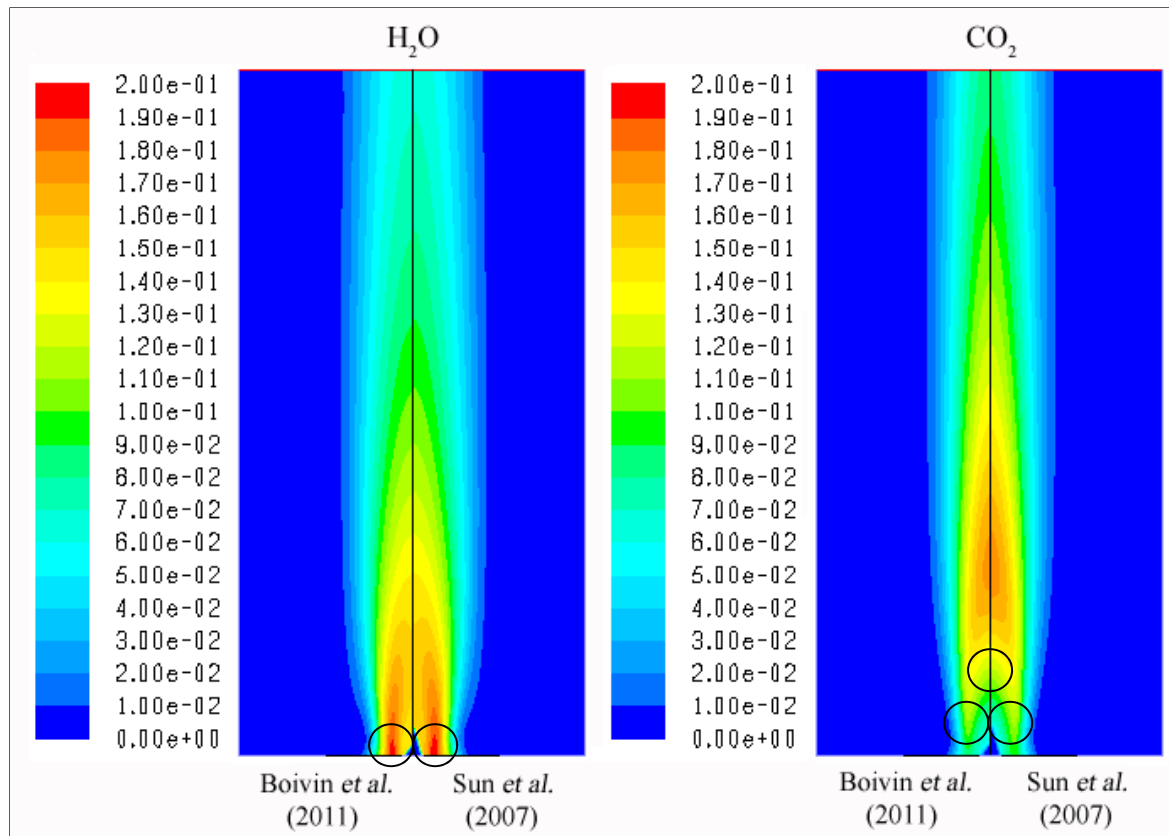


Figure 3.9 Effet de la chimie cinétique sur la prédiction des espèces H_2O et CO_2

Finalement, le temps d'utilisation du processeur a été obtenu pour les trois mécanismes complets ainsi que pour le mécanisme réduit dans le but de vérifier si le choix du mécanisme aurait une influence sur le temps d'exécution de la simulation. L'ordinateur utilisé pour les simulations possède deux processeurs Intel Pentium ayant une vitesse de 3,20 GHz chacun. Le Tableau 3.6 présente le temps processeur pour 36 000 itérations, soit le nombre d'itérations approximatif pour obtenir une convergence de 1×10^{-6} . Selon les résultats, l'utilisation du mécanisme réduit (Boivin *et al.*, 2011) permettrait de réduire au minimum de 50 heures le temps de simulation comparativement au mécanisme complet (Saxena et Williams, 2006) et au maximum de 155 heures comparativement au mécanisme de Sun *et al.* (2007). En raison de la qualité des prédictions et résultats obtenue à l'aide du mécanisme réduit de Boivin *et al.* (2011), il s'avère que ce mécanisme réduit est fort avantageux, surtout pour des simulations plus complexes.

Tableau 3.6 Temps processeur nécessaire pour
36 000 itérations avec le maillage de 98 841
nœuds sur un processeur à 3,20 GHz

Mécanisme	Temps processeur
Davis <i>et al.</i> (2005)	430,2 h
Saxena et Williams (2006)	404,1 h
Sun <i>et al.</i> (2007)	511 h
Boivin <i>et al.</i> (2011)	355,4 h

3.5.2 Effet de la radiation

La Figure 3.10 présente l'influence de la radiation sur les profils numériques radiaux de la température de flamme et des espèces chimiques majeures à $z/H_T = 60\%$. Les résultats de l'influence de la radiation à $z/H_T = 10\%$, 20% et 40% sont présentés à l'Annexe VI (*Voir* Figures-A VI-6 à A VI-8) puisque l'effet de la radiation est peu marqué à $z/H_T = 10\%$ et augmente graduellement lorsque z/H_T augmente. Tout d'abord, on peut remarquer que la température de flamme maximale sans radiation est d'environ 2 210 K tandis qu'avec la radiation, elle est d'approximativement 1 845 K. L'ajout du phénomène de la radiation entraîne donc une diminution d'environ 365 K au niveau de la température maximale de la flamme; cette diminution étant approximativement deux fois plus importante que celle observée par Claramunt *et al.* (2004) pour une flamme méthane-air partiellement prémélangée ($\phi = 2,5$). De plus, en comparant avec les résultats expérimentaux de la température de flamme, on observe que ceux-ci sont plus proches des résultats numériques incluant l'effet de la radiation. Pour les profils de l' H_2 et du CO , l'inclusion du phénomène de radiation au modèle numérique ne semble avoir aucune influence significative puisque les quantités sont minimales à cette hauteur. Toutefois, au niveau des espèces principales produites lors de la combustion, soit l' H_2O et le CO_2 , une différence peut être observée. En effet, les concentrations sont supérieures en incluant la radiation jusqu'à une distance radiale de 4 mm et de 3,5 mm pour l' H_2O et le CO_2 respectivement avant de devenir inférieures, et ce, pour le restant du profil radial.

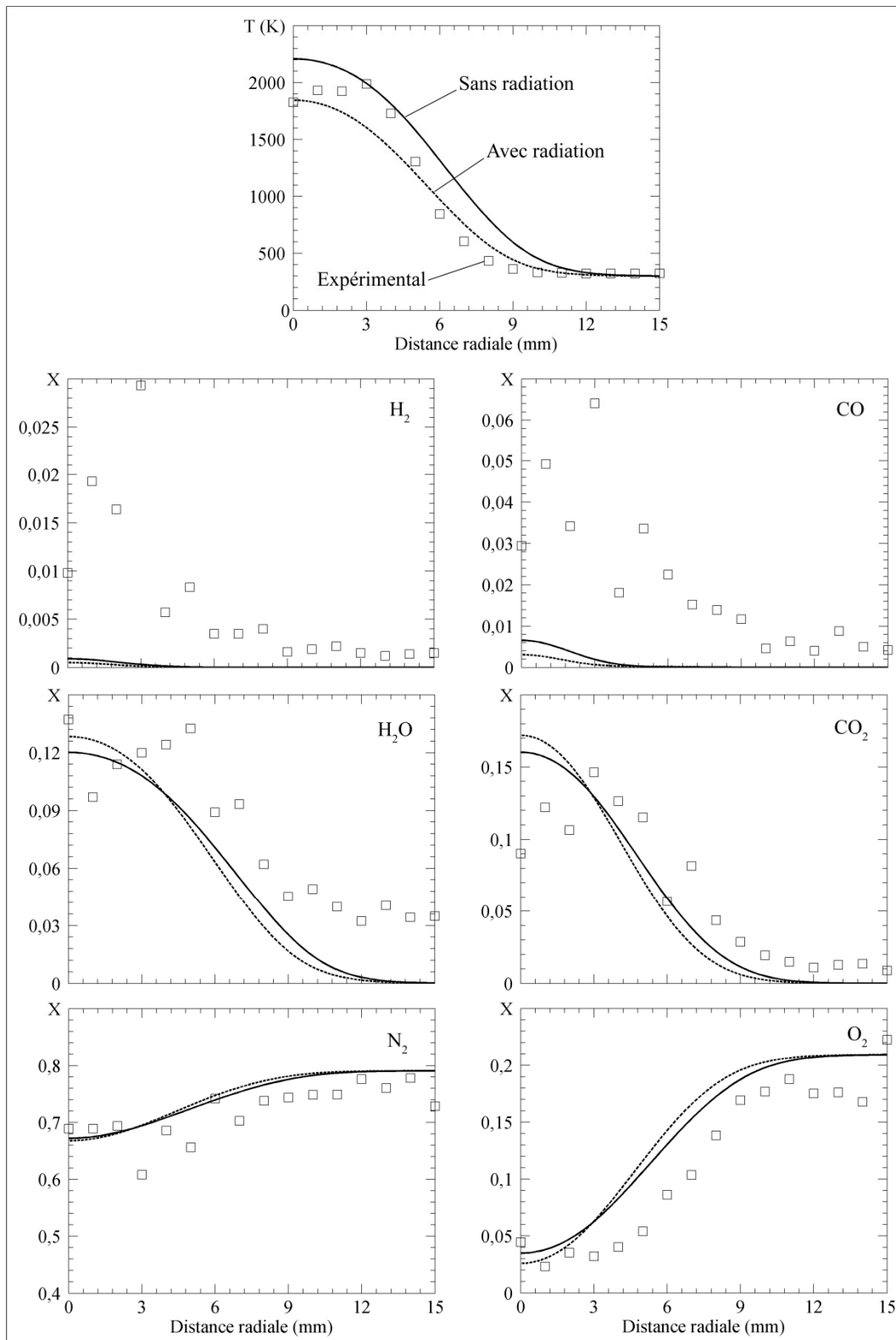


Figure 3.10 Comparaison des profils radiaux numériques (lignes) et expérimentaux (symboles) à $z/H_T = 60\%$

Finalement, au niveau de l'air, l'ajout de la radiation n'influence pas le profil obtenu pour le N_2 . Toutefois, pour ce qui est de l' O_2 , on remarque que la quantité présente dans la flamme est plus faible jusqu'à une distance radiale d'environ 4 mm lorsque le phénomène de radiation est inclus et que le phénomène contraire se produit par la suite. Ceci peut tout simplement être expliqué par la présence plus élevée d' H_2O et de CO_2 dans la flamme; ces espèces utilisant l' O_2 présent dans la flamme pour se former.

Les Figures 3.11 et 3.12 présentent les isocontours sur tout le domaine pour la température de flamme ainsi que pour l' H_2O et le CO_2 , respectivement. Les résultats pour l' H_2 , le CO , le N_2 et l' O_2 ont été omis puisqu'aucune différence supplémentaire n'était visible, mais ils sont toutefois présentés à l'Annexe VI. Sur la Figure 3.11, on peut remarquer que la zone de température maximale diminue avec l'addition de la radiation. En effet, sans radiation, la température maximale de 2 330 K forme un cône à une distance radiale de 3,3 mm et rejoint l'axe axial à une hauteur de 25 mm. En ajoutant la radiation, la zone de température maximale, d'une valeur approximative de 2 220 K, forme plutôt un cylindre également à une distance radiale de 3,3 mm, mais sur une hauteur de 12 mm seulement. Sur la Figure 3.12, en présence du phénomène de la radiation, on peut remarquer que la concentration centrale d' H_2O ainsi que celle de CO_2 augmentent comparativement à la concentration centrale sans radiation au fur et à mesure qu'on se déplace dans la flamme. En effet, avec radiation et près de la sortie du brûleur, les concentrations centrales sont très similaires tandis qu'elles sont plus élevées plus loin dans la flamme. Ceci a d'ailleurs été observé par Claramunt *et al.* (2004) pour une flamme méthane-air partiellement prémélangée ($\phi = 2,5$). De plus, pour l'isocontour de l' H_2O (Voir Figure 3.12 gauche), l'augmentation de la concentration est également présente sur le pourtour de la flamme en présence de radiation. Pour ce qui est du CO_2 (Voir Figure 3.12 droite), la zone de production principale, lorsque la radiation est incluse, a une superficie supérieure au centre de la flamme. Pour les deux espèces, toutes ces observations peuvent être expliquées par le principe de la décomposition thermique. En effet, à haute température, les réactions de dissociation sont favorisées (Kuo, 2005), ce qui entraîne la décomposition du CO_2 en CO et O_2 ainsi que celle de l' H_2O en H_2 et O_2 . Donc, sans l'effet de la radiation, les températures sont assez élevées pour dissocier le CO_2 et l' H_2O , ce qui

entraîne une diminution des concentrations. Par contre, en ajoutant l'effet de la radiation, la diminution de la température de flamme est assez importante pour diminuer la dissociation du CO_2 et de l' H_2O , ce qui explique leur présence en plus grande concentration.

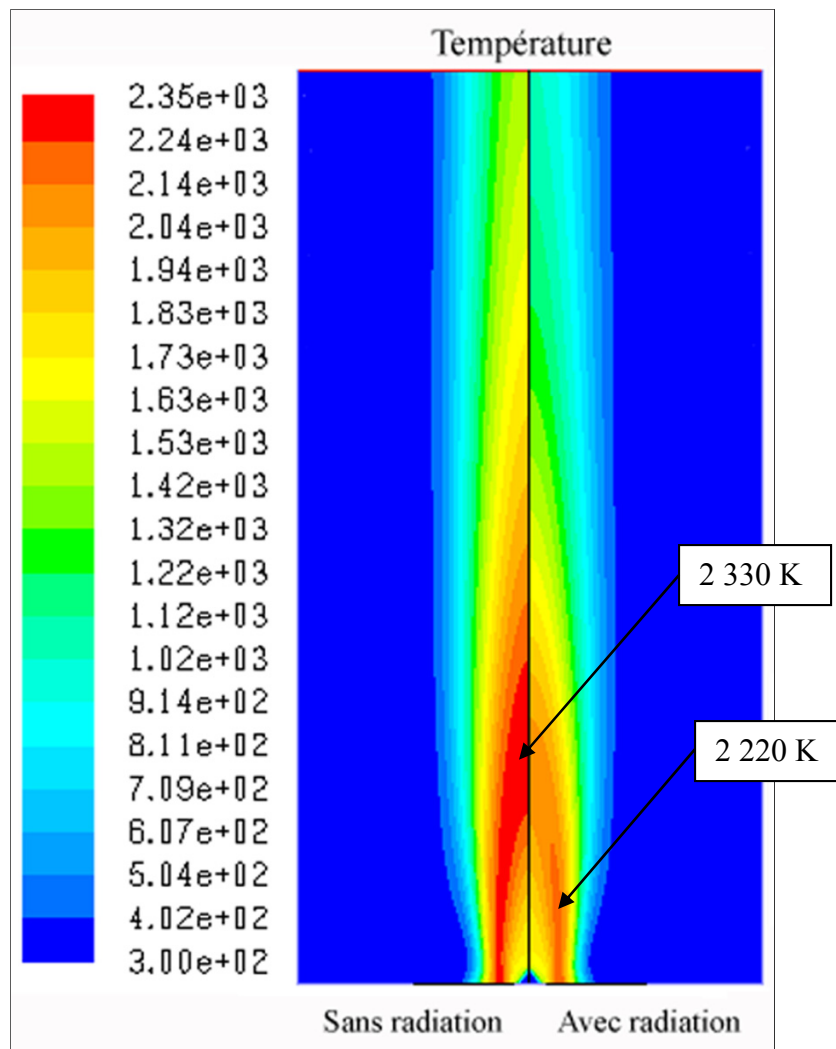


Figure 3.11 Effet de la radiation sur la prédiction de la température de flamme

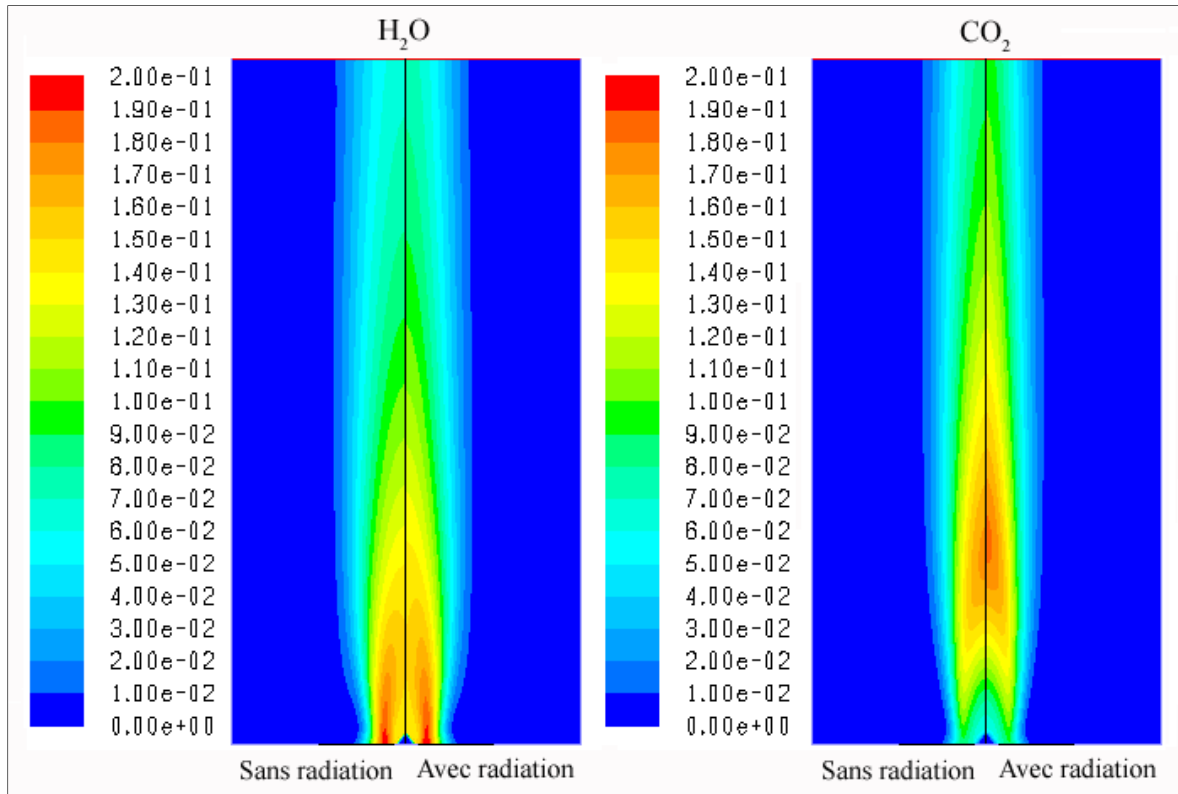


Figure 3.12 Effet de la radiation sur la prédiction de H_2O et CO_2

La Figure 3.13 présente une comparaison entre les isocontours numériques avec et sans radiation pour l'espèce chimique OH et l'image qualitative obtenue expérimentalement. On peut remarquer que cette image qualitative est très similaire aux isocontours numériques incluant la radiation (*Voir* Figure 3.13 droite). En effet, la largeur de la flamme ainsi que la hauteur où la concentration d'OH devient nulle sont presque identiques. En n'incluant pas la radiation (*Voir* Figure 3.13 gauche), le contour numérique du OH est plus large qu'expérimentalement et le OH continue de réagir à une distance axiale plus élevée. Cependant, le cône intérieur n'est pas très visible numériquement, que ce soit sans ou avec radiation, comparativement à ce qui a été obtenu expérimentalement.

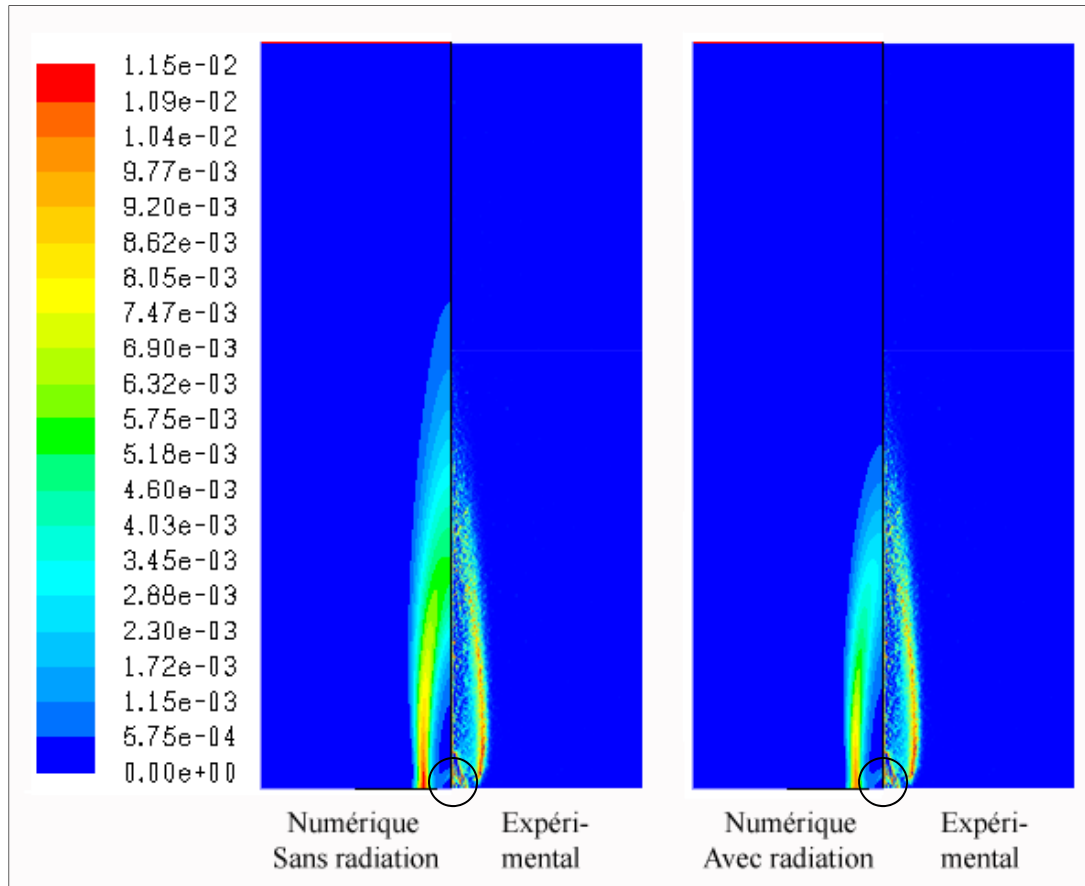


Figure 3.13 Comparaison des prédictions numériques de OH avec et sans radiation

3.5.3 Effet du ratio H_2/CO

Pour conclure ce chapitre, le modèle numérique incluant le mécanisme réduit de Boivin *et al.* (2011) ainsi que le phénomène de radiation a été utilisé afin de reproduire numériquement l'effet du ratio H_2/CO . Cette étape permettra de constater si l'utilisation de ce mécanisme est valide sur toute la plage des carburants étudiés, soit de 100% H_2 à 5% H_2 / 95% CO . La Figure 3.14 présente d'ailleurs une comparaison à $z/H_T = 20\%$ entre les profils radiaux expérimentaux et numériques pour la température de flamme ainsi que pour les espèces chimiques principales pour tous les ratios H_2/CO étudiés et pour $\phi = 3$.

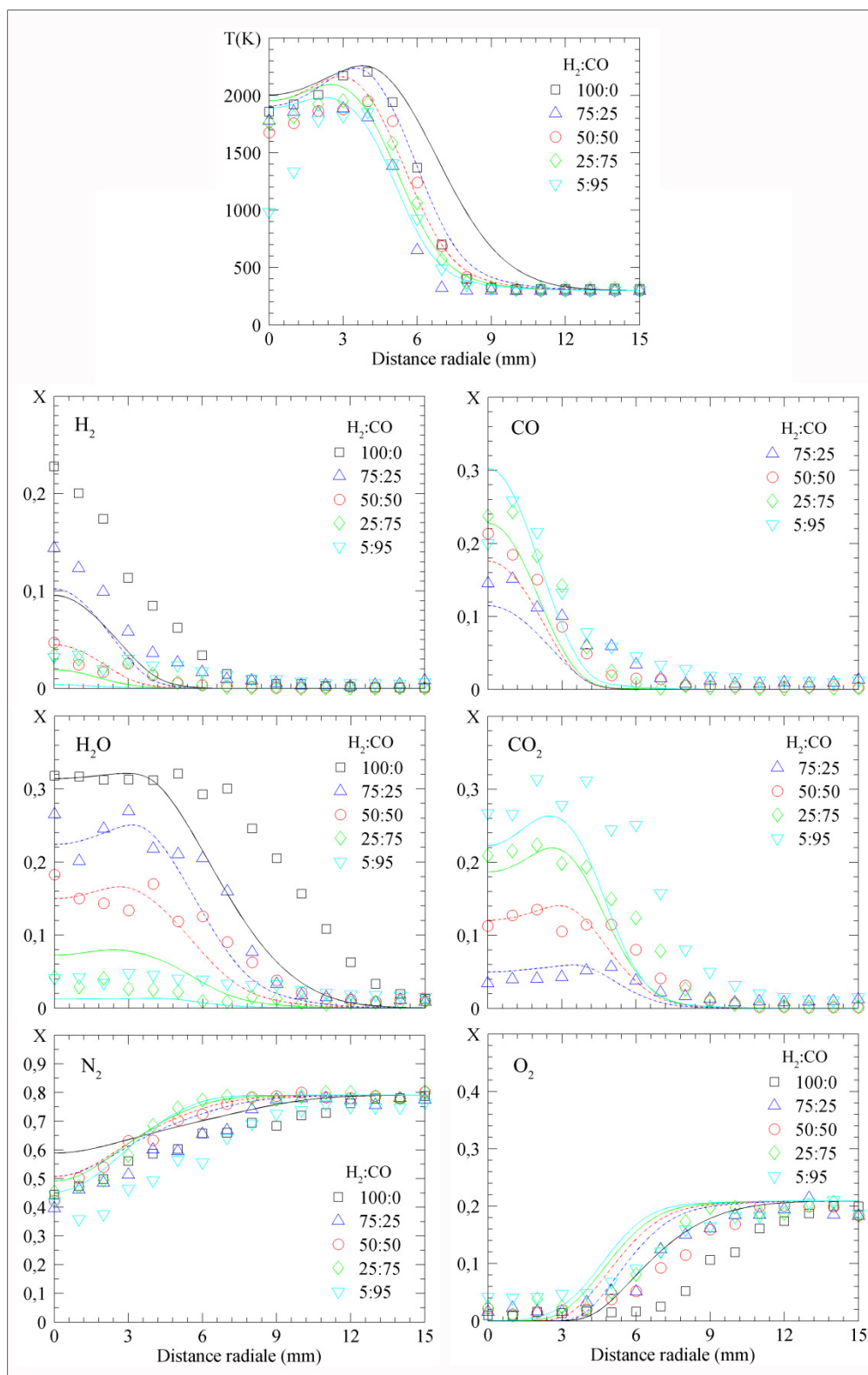


Figure 3.14 Comparaison entre les profils radiaux expérimentaux (symboles) et numériques (lignes) pour des flammes d' H_2/CO à $z/H_T = 20\%$

Sur la Figure 3.14, on remarque que les résultats numériques obtenus pour le CO , l' H_2O , le CO_2 et le N_2 sont très similaires aux résultats expérimentaux pour tous les carburants. Concernant la température, les résultats numériques surestiment les mesures expérimentales jusqu'à une distance radiale d'environ 3 mm. Pour une distance radiale plus élevée, les résultats numériques et expérimentaux semblent bien concorder. Pour ce qui est de l' H_2 , une différence importante est observée principalement avec le carburant composé de 100% H_2 , ce qui pourrait possiblement s'expliquer par une imprécision au niveau des coefficients de diffusion des espèces H_2 et H . En ajoutant du CO au carburant, l'écart entre la valeur numérique et expérimentale pour une même distance radiale diminue. Finalement, au niveau de l' O_2 , celui-ci se diffuse à une distance radiale plus petite numériquement qu'expérimentalement, ce qui donne des flammes plus minces avec la simulation numérique.

La Figure 3.15 présente l'influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques de la température de flamme. Tout d'abord, on observe que la zone centrale de haute température diminue en hauteur avec l'ajout de CO au carburant. De plus, le pourtour de la flamme demeure la zone de température maximale, mais cette dernière diminue d'environ 500 K entre la flamme d'hydrogène pur et la flamme composée de 5% H_2 et de 95% CO .

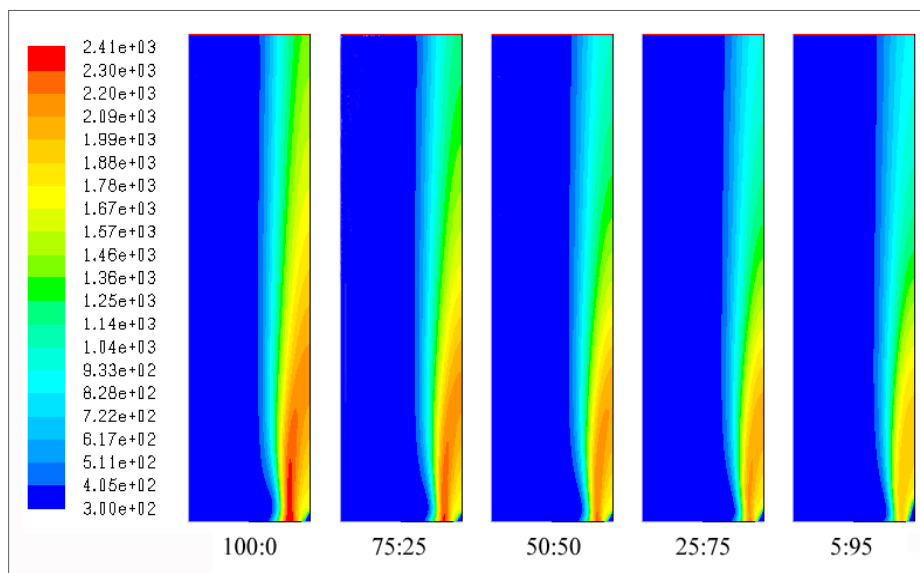


Figure 3.15 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques de la température de flamme

Les isocontours numériques de l' H_2 et du CO, soit les espèces composant le carburant, sont présentés à l'Annexe VI (*Voir* Figures-A VI-11 et A VI-12). Pour l' H_2 (*Voir* Figure-A VI-11), la concentration maximale diminue avec l'ajout du CO, tel qu'attendu. De plus, l' H_2 se diffuse moins loin dans la flamme puisqu'il réagit rapidement à la sortie du brûleur. Contrairement à l' H_2 , la concentration maximale de CO (*Voir* Figure-A VI-12) augmente puisque sa concentration initiale dans le carburant augmente. De plus, la zone de concentration maximale à la sortie du brûleur est constante pour tous les carburants sauf pour celui composé de 5% d' H_2 et de 95% de CO, où la zone de concentration maximale a une plus grande superficie. La Figure 3.16 présente la variation de la concentration massique centrale d' H_2 et de CO par rapport à sa concentration initiale pour tous les carburants.

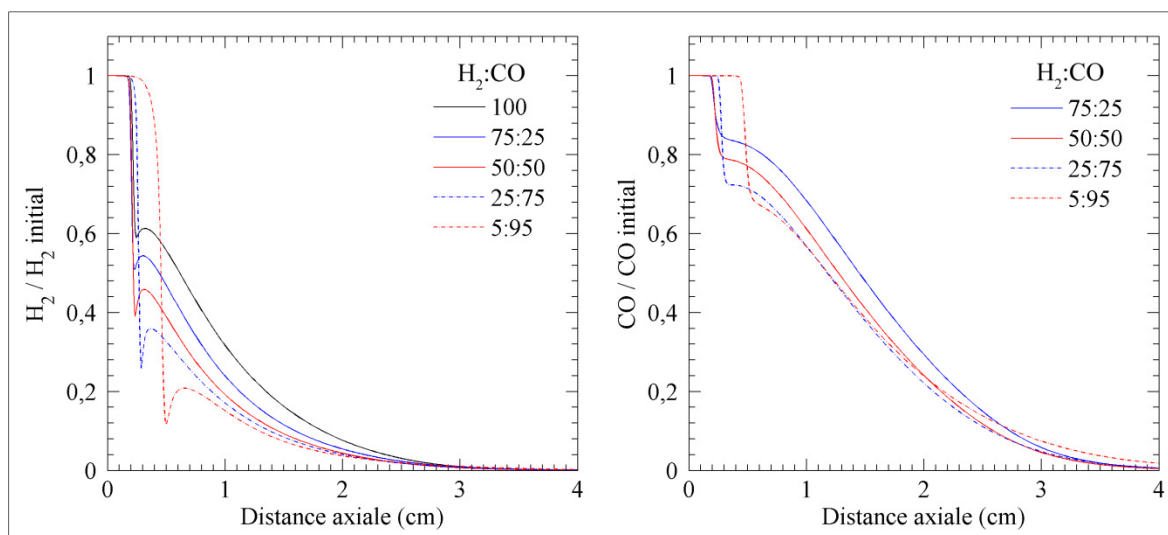


Figure 3.16 Variation de la concentration massique d' H_2 (gauche) et de CO (droite) par rapport à sa concentration initiale respective selon l'axe central

Pour l' H_2 (*Voir* Figure 3.16 gauche), celui-ci est consommé moins rapidement à la sortie du brûleur, d'où le plateau observé, pour le carburant dont la concentration initiale est de seulement 5%. Par contre, lorsque les réactions débutent, soit à une température d'environ 700 K, la chute initiale observée pour la concentration d' H_2 est moins importante pour les carburants contenant une plus grande quantité d' H_2 . À la suite de cette chute, la concentration d' H_2 augmente légèrement pour tous les carburants, ce qui peut s'expliquer par une recombinaison partielle de l'espèce H en H_2 . Finalement, après que l' H_2 atteint un sommet,

celui-ci est consommé plus rapidement lorsque sa concentration dans le carburant est élevée puisque la concentration d' H_2 dans la flamme devient nulle à la même distance axiale pour tous les carburants. Pour le CO (*Voir* Figure 3.16 droite), celui-ci réagit après que l' H_2 a commencé à réagir, car l' OH est nécessaire à son oxydation. De plus, on observe également une présence de CO sur une distance axiale plus grande que pour l' H_2 , tel qu'observé expérimentalement et à l'aide de CHEMKIN.

Les Figures 3.17 et 3.18 présentent les isocontours numériques de l' H_2O et du CO_2 respectivement, soit les espèces chimiques principales produites à la suite de la combustion du carburant. Pour l' H_2O (*Voir* Figure 3.17), la hauteur de la zone de concentration maximale au centre de la flamme diminue lorsque la concentration d' H_2 dans le carburant diminue. De plus, la zone de concentration maximale d' H_2O se situe au centre de la flamme pour le carburant d' H_2 pur, mais se situe plutôt sur le pourtour de la flamme lorsque du CO est ajouté au carburant. Pour le CO_2 (*Voir* Figure 3.18), la zone de concentration maximale se situe relativement toujours au même endroit, peu importe le carburant. Par contre, plus la concentration initiale de CO dans le carburant est importante et plus la quantité de CO_2 présente près du brûleur est élevée. Ceci peut d'ailleurs s'expliquer par la chute initiale plus importante de la concentration de CO à la sortie du brûleur (*Voir* Figure 3.16 droite) lorsque sa concentration initiale dans le carburant est plus élevée. De plus, sur la Figure 3.18, on remarque que le cône à la sortie du brûleur est plus allongé pour le carburant 5% H_2 / 95% CO, ce qui avait également été observé expérimentalement. Cet allongement s'explique par le fait que le CO ne réagit pas immédiatement puisque l' H_2 n'a pas encore produit l' OH nécessaire à son oxydation.

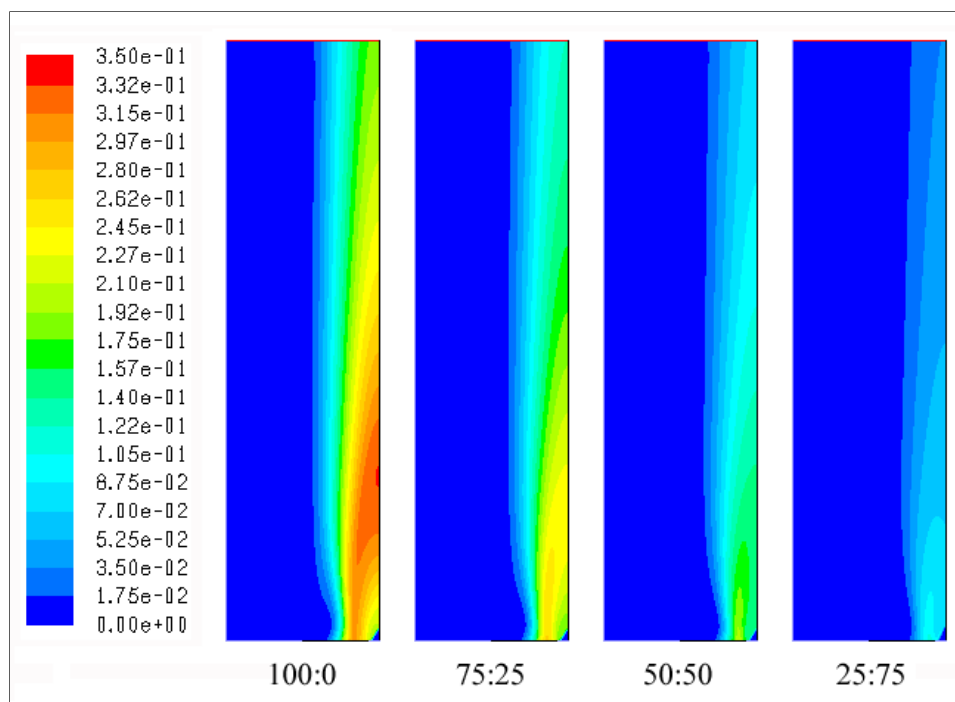


Figure 3.17 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques de l' H_2O

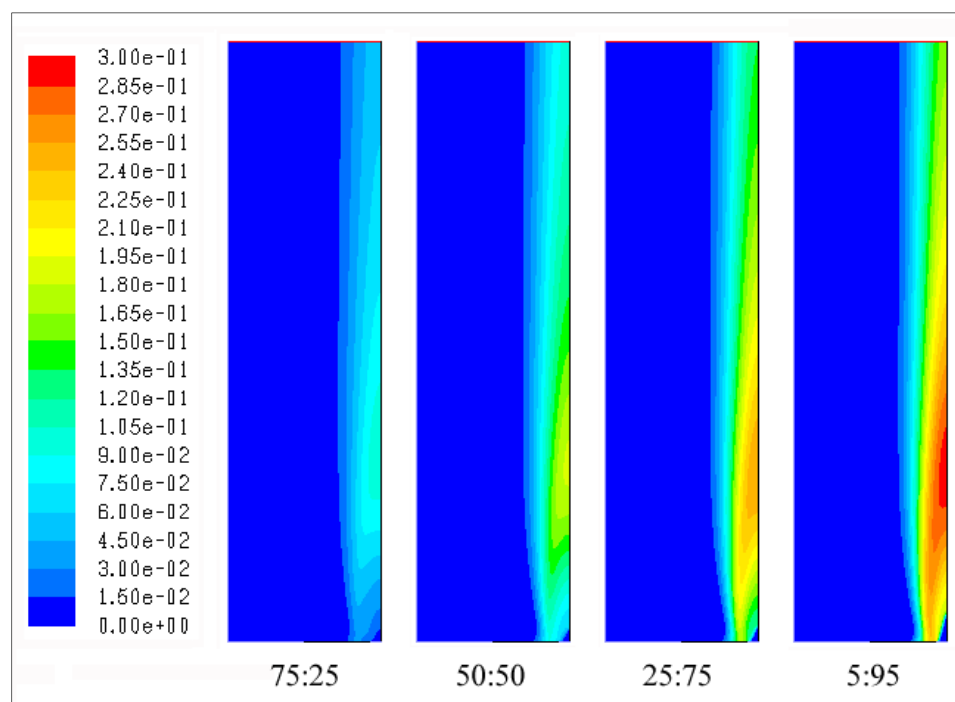


Figure 3.18 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques du CO_2

La Figure 3.19 présente la variation axiale de la concentration massique de l' H_2O , du CO_2 et de l' OH . Pour l' H_2O , on remarque que sa concentration augmente rapidement dès que le carburant sort du brûleur. À la même distance axiale, on observe que le OH est produit et consommé très rapidement, soit en même temps que la concentration d' H_2O augmente, ce qui confirme que la réaction $\text{OH} + \text{H}_2 = \text{H} + \text{H}_2\text{O}$ est primordiale pour former l' H_2O . Toutefois, à la suite de la consommation du premier pic d' OH , sa concentration recommence à augmenter jusqu'à ce qu'elle atteigne un deuxième sommet. Cette deuxième production d' OH est possible grâce à la dissociation de l' H_2O par la réaction $\text{H} + \text{H}_2\text{O} = \text{OH} + \text{H}_2$. L' H_2O est donc dissocié dans la zone de haute température, d'où la diminution de sa concentration sur la Figure 3.19, pour former du OH qui sera ensuite utilisé pour produire le CO_2 par la réaction $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$.

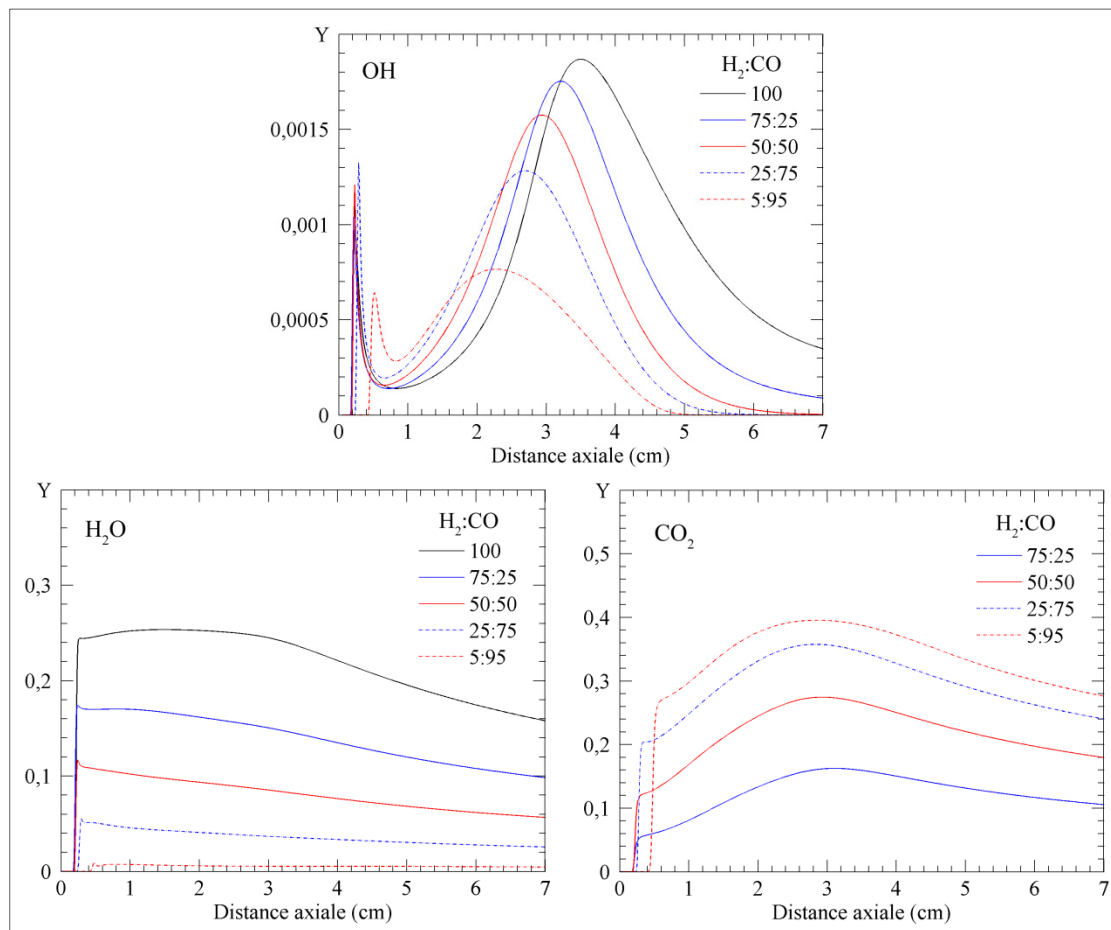


Figure 3.19 Variation axiale de la concentration massique d' H_2O , de CO_2 et d' OH

Les Figures 3.20 et 3.21 présentent les isocontours numériques du N_2 et de l' O_2 respectivement. Comme le coefficient de diffusion de l' H_2 est plus élevé que celui du CO , l'interface où le mélange entre l'air ambiant et le carburant devient stoechiométrique se retrouve à une distance radiale plus élevée, ce qui a pour conséquent une flamme plus large et sensiblement plus haute. Ceci a d'ailleurs été observé expérimentalement et est discuté dans le Chapitre 2. De plus, puisque le coefficient de diffusion est dépendant de la température, la température de flamme plus élevée pour le carburant composé seulement d' H_2 favorise la diffusion de l' H_2 dans l'air. Finalement, pour la flamme 100% H_2 , l' H_2 réagit principalement avec l' O_2 de l'air ambiant pour produire du OH sur le pourtour de la flamme, ce qui explique la présence d'une grande zone centrale où l' O_2 est absent. Toutefois, en ajoutant du CO , la quantité d' O_2 réagissant avec l' H_2 diminue, ce qui lui permet de se propager plus loin dans la flamme, d'où la diminution de la zone centrale où l' O_2 est absent.

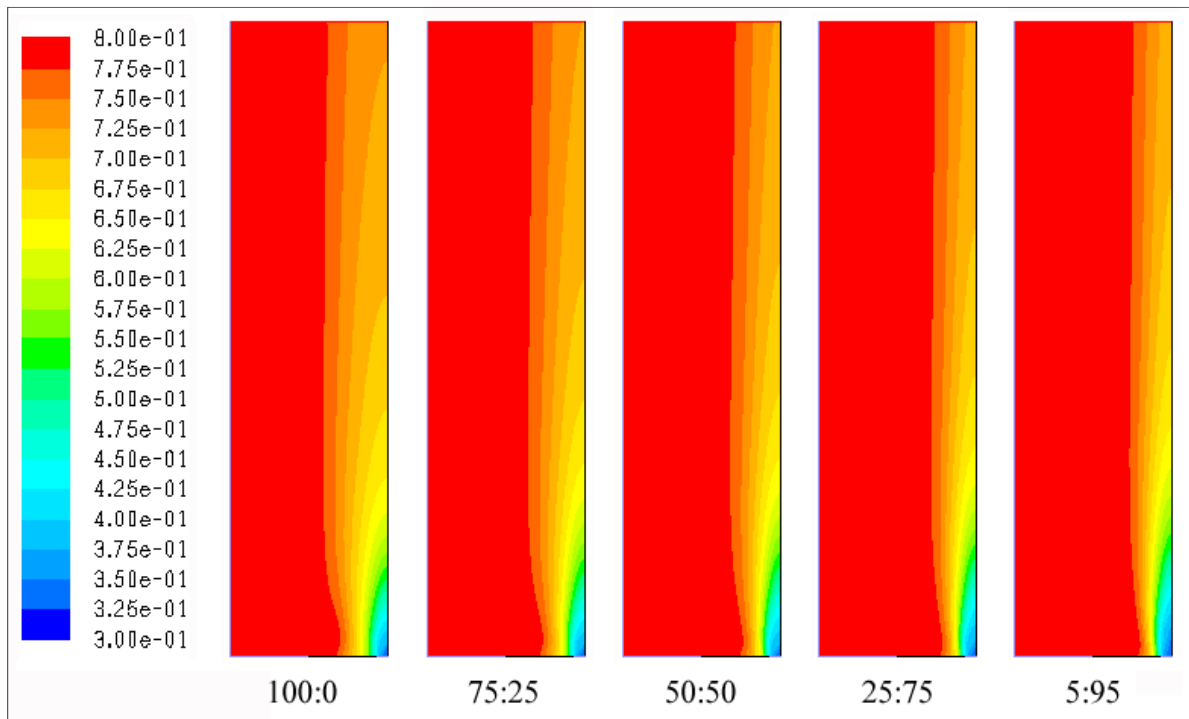


Figure 3.20 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques du N_2

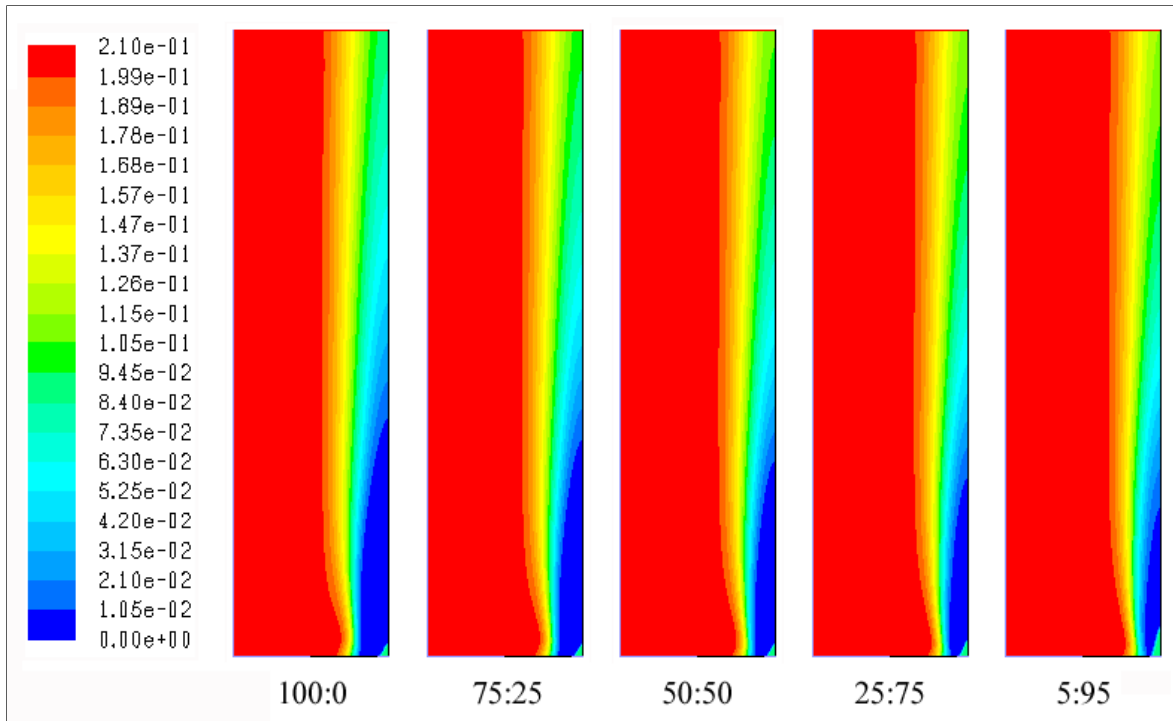


Figure 3.21 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques de l' O_2

3.6 Applicabilité du modèle

La création du présent modèle numérique ainsi que l'étude des différents paramètres seront utiles pour d'autres chercheurs et pour le développement technologique de systèmes de génération d'énergie.

Tout d'abord, au niveau des mécanismes de chimie, la qualité de prédictions des espèces chimiques principales et de la température de flamme obtenue avec le mécanisme réduit de Boivin *et al.* (2011) justifie son utilisation pour des simulations plus complexes. En effet, il serait possible d'utiliser ce mécanisme réduit dans le but de simuler la combustion d'un carburant H_2/CO dans une turbine à gaz ou un brûleur industriel, par exemple.

De plus, les résultats présentés dans cette thèse permettent d'affirmer que l'inclusion du phénomène de radiation lors de la simulation d'une flamme H_2/CO est importante afin de bien reproduire la température de flamme et les concentrations d'espèces tel que le OH. En

tenant compte de la radiation, il devient ainsi possible d'améliorer la prédiction des émissions de NO_x thermiques qui sont importantes dans ce genre de flamme. La température de flamme étant d'ailleurs plus élevée pour les carburants H_2/CO que pour le méthane, elle pourrait entraîner plusieurs problèmes dans les systèmes de génération d'énergie, principalement au niveau des contraintes de température associées aux matériaux utilisés dans la fabrication. Pour y remédier, certaines modifications au niveau du fonctionnement de ces systèmes devront être apportées. Par exemple, dans les turbines à gaz, une plus grande quantité d'air de refroidissement devra être acheminée pour refroidir la chambre de combustion afin que les matériaux résistent au changement de température.

Finalement, en ce qui concerne la plage de carburants H_2/CO étudiée, certaines recommandations peuvent être effectuées. Tout d'abord, les carburants aux extrémités de la plage ne sont pas conseillés. Pour le carburant 100% H_2 , celui-ci offre de plus grands risques liés à sa grande plage d'inflammabilité ainsi qu'à sa facilité d'inflammation. De plus, le dégagement d'énergie associé à la combustion de l' H_2 sans présence de CO est plus élevé, ce qui a pour conséquence que la température de flamme est plus élevée et donc que la production d'émissions polluantes de NO_x est plus grande. En ce qui concerne le carburant 5% H_2 / 95% CO , son utilisation entraînerait une plus grande présence de CO dans les gaz imbrûlés, car il est plus difficile à oxyder. En effet, comme il y a peu d' H_2 dans le carburant, l'espèce OH est présente en moins grande quantité donc le CO ne peut pas réagir pour former du CO_2 . À partir des résultats obtenus avec des flammes laminares, il est possible d'affirmer que les carburants ayant un ratio H_2/CO dans les environs de 50/50 seraient un bon compromis au niveau des émissions polluantes de NO_x , de CO_2 et de CO . D'ailleurs, les résultats récents de Lee *et al.* (2010), qui présentent une étude sur la performance d'une turbine à gaz au niveau des caractéristiques des émissions polluantes et de la structure de la flamme, entre autres, et ce, avec divers carburants synthétiques composés d' H_2 et de CO , suggèrent qu'un carburant contenant un minimum de 40% d' H_2 serait un bon choix, car il n'émet pas de CO . De plus, les émissions de NO_x augmentent considérablement lorsque plus de 40% d' H_2 est présent. Le carburant composé de 40% d' H_2 et de 60% de CO pourrait donc être un bon compromis et coïncide avec les résultats présentés dans cette thèse pour des

flammes laminaires confirmant ainsi les résultats obtenus et illustrant également la généralisation des résultats à des systèmes plus complexes et turbulents.

3.7 Conclusion

Pour conclure, l'objectif principal visait la production d'un modèle numérique permettant de reproduire une flamme partiellement prémélangée composée d'hydrogène et de monoxyde de carbone. Pour y arriver, deux étapes importantes ont été réalisées, soit l'étude de l'influence de divers mécanismes H_2/CO ainsi que l'influence de l'inclusion du phénomène de la radiation sur la simulation numérique d'une flamme partiellement prémélangée d'un carburant composé de 50% H_2 et de 50% CO . Par la suite, le modèle final a été validé sur une grande plage de ratios H_2/CO .

Tout d'abord, les résultats numériques obtenus à l'aide de trois mécanismes complets de chimie de combustion (Davis *et al.* (2005), Saxena et Williams (2006) et Sun *et al.* (2007)) ainsi qu'un mécanisme réduit (Boivin *et al.*, 2011) ont été comparés pour la température de flamme et les espèces chimiques majeures. Pour le mécanisme de Davis *et al.* (2005), de Saxena et Williams (2006) et de Boivin *et al.* (2011), aucune différence notable n'a été observée. Par contre, celui de Sun *et al.* (2007) présentait quelques différences principalement du fait que les espèces réagissaient plus lentement à la sortie du brûleur. Toutefois, plus loin dans la flamme, cette différence disparaissait et les résultats étaient similaires à ceux obtenus par les autres mécanismes. En somme, l'utilisation d'un mécanisme en particulier ne semble pas avoir un impact majeur sur les résultats numériques obtenus. Néanmoins, la comparaison des temps processeurs nécessaires pour faire converger la simulation entraîne la recommandation d'utiliser le mécanisme réduit de Boivin *et al.* (2011) dans le but de diminuer le temps de calcul.

Par la suite, l'inclusion du modèle de radiation est importante principalement pour les mesures de température. En effet, les valeurs de températures obtenues numériquement étaient plus proches des valeurs expérimentales lorsque le phénomène de perte de chaleur par

radiation était présent. De plus, en comparant les profils d'OH, une similarité est observée entre le profil numérique et celui expérimental. Comme cette espèce est importante pour l'oxydation du CO, l'ajout de la radiation joue un rôle important pour la production de CO₂.

Finalement, le modèle a été utilisé pour modéliser la flamme de cinq carburants permettant de couvrir la plage complète entre 100% H₂ et 5% H₂ / 95% CO. En comparant avec les résultats expérimentaux obtenus dans le Chapitre 2, il a été conclu que le modèle est très représentatif de la réalité en ce qui a trait à une flamme partiellement prémélangée ayant une richesse de 3. Le principal écart se situe toutefois au niveau de la comparaison de la concentration d'H₂ du carburant composé d'H₂ seulement. En effet, les résultats numériques semblent sous-estimer considérablement les valeurs expérimentales. Une recherche supplémentaire serait donc nécessaire afin d'augmenter le niveau de précision des caractéristiques physiques spécifiques de l'hydrogène. Par contre, en ajoutant du CO au carburant, les concentrations d'H₂ numériques et expérimentales étaient similaires.

CONCLUSION

L'objectif principal de ce projet de recherche visait à caractériser expérimentalement et numériquement la flamme de carburants synthétiques gazeux composés de diverses concentrations d' H_2 , de CO et de CO_2 .

Dans le premier chapitre, l'influence de la variation de la concentration de CO_2 dans le carburant ainsi que l'effet du ratio H_2/CO sur les émissions polluantes de NO_x , la température de flamme, la hauteur de flamme et l'apparence de la flamme ont été étudiés. L'addition de CO_2 diminue la température de flamme de même que les EINO_x pour toutes les richesses tandis que l'augmentation du ratio H_2/CO n'influence pas la température de flamme, mais diminue les EINO_x pour les richesses inférieures à 2. La constance observée au niveau de la température de flamme lors de l'ajout de CO, dont la température de flamme adiabatique est plus élevée que celle de l' H_2 , est principalement due à une augmentation de la perte de chaleur par radiation causée par une présence accrue de CO_2 dans la flamme. De plus, l'ajout de CO_2 ainsi que l'augmentation du ratio H_2/CO modifient la couleur de la flamme d'orange à bleu, ce qui pourrait être expliqué par la diminution de la concentration de CO dans les produits de combustion. À la suite de ces résultats, il a été conclu que les NO_x des flammes $\text{H}_2/\text{CO}/\text{CO}_2$ dépendent principalement de la température de flamme, qui elle dépend des espèces réactives présentes dans le carburant, soit l' H_2 et le CO. Le restant de la thèse a donc été consacré à mesurer et prédire les espèces chimiques présentes dans la flamme, car une bonne prédiction des espèces et du dégagement de chaleur permettront de mieux prédire les émissions polluantes de NO_x .

Dans le deuxième chapitre, les effets de la variation du ratio H_2/CO sur la structure chimique d'une flamme partiellement prémélangée ont été étudiés à l'aide de la spectroscopie Raman. Par contre, des mesures ont tout d'abord été prises à différentes hauteurs dans une flamme d'hydrogène pur et les résultats obtenus ont été comparés à ceux présents dans la littérature dans le but de valider la méthodologie expérimentale. En somme, l'ajout de CO diminue la valeur maximale d' H_2O mesurée tout en augmentant la concentration centrale de CO_2 , tel

qu'attendu. Toutefois, pour tous les carburants étudiés, la concentration de CO_2 mesurée à 20% de la hauteur visible de la flamme est plus petite que la concentration stoechiométrique tandis que l' H_2O mesuré a atteint la concentration stoechiométrique, ce qui peut s'expliquer par les réactions chimiques plus rapides pour la production d' H_2O comparativement à celles nécessaires pour produire le CO_2 .

Dans le troisième chapitre, un modèle numérique reproduisant une flamme partiellement prémélangée composée de 50% d'hydrogène et de 50% de monoxyde de carbone a été réalisé. Ce modèle a tout d'abord été validé à froid au niveau de la vitesse centrale de l'écoulement du carburant. Par la suite, les résultats expérimentaux obtenus à l'aide de la spectroscopie ont été comparés aux résultats numériques de quatre différents mécanismes H_2/CO dans le but de déterminer quel mécanisme serait le plus représentatif. Le mécanisme réduit proposé par Boivin *et al.* (2011) a été sélectionné, ce qui permet de réduire le temps de simulation tout en conservant la qualité des prédictions de mécanismes chimiques plus complexes. Une fois le mécanisme déterminé, le phénomène de la radiation a été inclus au modèle. Son influence principale se situe au niveau de la température de flamme ainsi que de la similarité observée entre les profils qualitatifs d' OH . En effet, la perte de chaleur par radiation entraîne une diminution de la température de flamme de même qu'une diminution de la hauteur à laquelle l' OH finit de réagir, ce qui se traduit par une hauteur de flamme plus faible. Ces observations numériques ont d'ailleurs été validées avec les résultats expérimentaux. Pour conclure cette section, les résultats numériques du modèle final ont été comparés aux résultats expérimentaux pour les cinq carburants à l'étude. Mise à part une différence considérable au niveau de la concentration d' H_2 présente dans la flamme pour le carburant composé d' H_2 seulement, le modèle créé est très représentatif de la réalité.

Finalement, suite aux résultats obtenus avec des flammes laminaires, un carburant composé de 50% d' H_2 et de 50% de CO semblerait être un compromis intéressant au niveau des émissions polluantes de NO_x , de CO et de CO_2 . En effet, l'ajout de CO à l' H_2 permet de diminuer la température, ce qui entraîne une diminution des émissions de NO_x . De plus, en présence de 40% d' H_2 , la présence de CO dans les gaz brûlés serait nulle.

RECOMMANDATIONS

À la suite de la validation du modèle numérique effectuée au niveau de la variation du ratio H_2/CO pour une flamme partiellement prémélangée, l'ajout d'un mécanisme pour les NO_x au présent modèle permettrait de trouver un carburant optimal au niveau de la production des émissions polluantes. En effet, il ne faut pas oublier que le but ultime de l'utilisation des carburants synthétiques est la réduction des émissions polluantes telles que les NO_x , le CO et le CO_2 .

D'autres aspects pourraient également être validés afin de rendre le modèle utilisable pour différents paramètres. Tout d'abord, comme le modèle a été validé à l'aide de plusieurs carburants pour une richesse de 3 seulement, il serait intéressant d'utiliser un des carburants, soit 50% H_2 / 50% CO, et de faire varier la richesse du mélange air-carburant de pauvre, $\phi < 1$, à très riche, correspondant à une flamme de diffusion. Pour accomplir cette étape, il serait toutefois nécessaire d'effectuer de nouvelles mesures expérimentales au niveau des espèces chimiques principales ainsi que de la température de flamme afin de valider les résultats numériques. De plus, comme la reproduction de l'espèce H_2 pour le carburant 100% H_2 n'était pas satisfaisante, il serait important d'effectuer des tests pour bien caractériser la diffusivité des espèces H_2 et H.

Finalement, comme les applications utilisant le gaz naturel fonctionnent principalement avec un écoulement turbulent à haute température et haute pression, l'étude de la variation de ces trois paramètres serait donc justifiée. D'ailleurs, il serait possible d'effectuer des mesures expérimentales dans le présent laboratoire au niveau de l'augmentation de la température initiale du carburant. En effet, l'utilisation d'une gaine chauffante sur le brûleur actuel permettrait d'obtenir des résultats facilement. Par contre, au niveau de l'écoulement turbulent et de la pression initiale du carburant, des modifications importantes au montage actuel seraient probablement nécessaires.

ANNEXE I

NO_x EMISSION CHARACTERISTICS OF PARTIALLY PREMIXED LAMINAR FLAMES OF H₂/CO/CO₂ MIXTURES

P. Ouimette et P. Seers, *Département de Génie mécanique, École de technologie supérieure,
1100 rue Notre-Dame Ouest, Montréal, Québec, H3C 1K3*

Cette annexe présente un article qui a été publié dans l'« International Journal of Hydrogen Energy », vol.34, pp. 9603-9610, 2009.

<http://dx.doi.org/10.1016/j.ijhydene.2009.09.042>

ANNEXE II

CALCUL DE L'INCERTITUDE POUR LE CHAPITRE 1

Tableau-A II-1 Résumé des incertitudes systématiques des appareils de mesure

Équipement	Plage d'opération	Erreur de lecture	Incertitude B_{xi}
Débitmètre air	0-23,121 L/min	B _{Précision} – $\pm 2\%$ de la pleine échelle	2,02% ou 0,466 L/min
		B _{Répétabilité} – $\pm 0,25\%$ de la pleine échelle	
Débitmètre carburant	0-57,15 L/min	B _{Précision} – $\pm 2\%$ de la pleine échelle	2,17% ou 1,24 L/min
		B _{Répétabilité} – $\pm 0,25\%$ de la pleine échelle	
		B _{Carburant} – $\pm 0,8\%$	
Analyseur O ₂	0-25 %	B _{Bruit} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	0,43%
		B _{Linéarité} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	
		B _{Répétabilité} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	
Analyseur CO	0-10 %	B _{Bruit} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	0,17%
		B _{Linéarité} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	
		B _{Répétabilité} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	
Analyseur CO ₂	0-20 %	B _{Linéarité} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	0,25%
		B _{Répétabilité} – $\pm 0,5\%$ de la pleine échelle	
		B _{Variation du signal de sortie} – $\pm 0,2\%$ de la pleine échelle	
		B _{Limite de détection} – $\pm 0,5\%$ de la pleine échelle	
Analyseur NO _x	0-300 ppm	B _{Bruit} – $\pm 1\%$ de la pleine échelle	1,22% ou 3,66 ppm
		B _{Linéarité} – $\pm 0,5\%$ de la pleine échelle	
		B _{Répétabilité} – $\pm 0,5\%$ de la pleine échelle	
Thermocouple Type G	0-2320°C	B _{Précision} – 4,5°C ou 1%	1,00%
Thermocouple Type K	-270-1372°C	B _{Précision} – 2,2°C ou 0,75%	2,2°C
Hauteur	0-25 cm	B _{Précision de la règle} – $\pm 0,1$ cm	0,12 cm
		B _{Dimension pixel caméra} – $\pm 0,07$ cm	

Tableau-A II-2 Résumé des incertitudes totales pour les carburants 2 à 5

	Équipement	Incertitude totale $U_{0,95}$	
		Minimum	Maximum
Carburant 2	$T_{\text{thermocouple}}$ (K)	1,00%	1,00%
	Mesure O_2 (%)	0,43%	0,43%
	Mesure CO (%)	0,17%	0,17%
	Mesure CO_2 (%)	0,25%	0,25%
	Mesure NO_x (ppm)	1,23%	5,65%
	Hauteur (cm)	1,41%	8,49%
Carburant 3	$T_{\text{thermocouple}}$ (K)	1,00%	1,01%
	Mesure O_2 (%)	0,43%	0,43%
	Mesure CO (%)	0,17%	0,17%
	Mesure CO_2 (%)	0,25%	0,25%
	Mesure NO_x (ppm)	1,33%	11,80%
	Hauteur (cm)	1,31%	8,14%
Carburant 4	$T_{\text{thermocouple}}$ (K)	1,00%	1,01%
	Mesure O_2 (%)	0,43%	0,43%
	Mesure CO (%)	0,17%	0,17%
	Mesure CO_2 (%)	0,25%	0,25%
	Mesure NO_x (ppm)	1,27%	3,19%
	Hauteur (cm)	1,64%	7,47%
Carburant 5	$T_{\text{thermocouple}}$ (K)	1,00%	1,00%
	Mesure O_2 (%)	0,43%	0,43%
	Mesure CO (%)	0,17%	0,17%
	Mesure CO_2 (%)	0,25%	0,25%
	Mesure NO_x (ppm)	1,24%	10,72%
	Hauteur (cm)	1,43%	8,57%

Tableau-A II-3 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de EINO_x pour le carburant 1 (45% H₂ / 35% CO / 20% CO₂)

Richesse		EINO _x (g/kg de carburant)	
Valeur	Incrtitude	Valeur	Incrtitude
Infinie	---	0,01764	1,80%
9,77	3,70%	0,02781	2,17%
5,96	2,55%	0,03976	2,29%
3,84	2,05%	0,07071	3,48%
3,22	2,14%	0,07105	3,65%
2,84	1,97%	0,07070	3,59%
2,47	2,07%	0,06998	4,50%
2,33	2,00%	0,06590	4,10%
2,16	2,07%	0,06368	4,55%
1,88	2,10%	0,06113	5,10%
1,78	2,17%	0,05699	5,27%
1,52	2,27%	0,07204	6,79%
1,36	2,32%	0,06948	7,71%
1,19	2,56%	0,05910	9,31%
1,13	2,53%	0,03972	12,33%
1,01	2,66%	0,00586	2 938,51%

Tableau-A II-4 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température et de hauteur pour le carburant 1 (45% H₂ / 35% CO / 20% CO₂)

Richesse		Température (K)		Hauteur (cm)	
Valeur	Incrtitude	Valeur	Incrtitude	Valeur	Incrtitude
Infinie	---	1 265,7	1,01%	17,12	1,12%
8,83	3,10%	1 307,5	1,02%	10,53	1,36%
5,26	2,29%	1 492,8	1,00%	8,19	2,16%
3,64	2,08%	1 631,2	1,00%	6,05	2,11%
3,07	2,07%	1 634,8	1,00%	4,69	2,72%
2,65	2,01%	1 706,9	1,00%	5,58	2,10%
2,21	1,94%	1 761,1	1,00%	4,82	2,45%
2,04	2,02%	1 779,6	1,00%	4,53	2,64%
1,88	2,10%	1 724,5	1,00%	3,57	3,27%
1,71	2,22%	1 725,1	1,00%	2,96	4,02%
1,61	2,19%	1 852,6	1,00%	2,61	4,56%
1,43	2,36%	1 884,6	1,00%	1,83	6,47%
1,25	2,59%	1 531,3	1,00%	1,32	8,89%
1,05	2,68%	1 136,7	1,00%	1,50	8,05%

Tableau-A II-5 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de EINO_x pour le carburant 2 (50% H₂ / 40% CO / 10% CO₂)

Richesse		EINO _x (g/kg de carburant)	
Valeur	Incrtitude	Valeur	Incrtitude
Infinie	---	0,02523	1,33%
8,86	3,12%	0,06825	1,99%
4,33	2,05%	0,09352	2,31%
3,38	1,97%	0,13879	2,83%
2,95	2,06%	0,16022	3,29%
2,63	1,89%	0,14782	3,49%
2,24	2,04%	0,14691	3,87%
2,13	1,99%	0,15913	4,19%
1,93	2,00%	0,18333	4,88%
1,72	2,15%	0,21154	5,96%
1,62	2,23%	0,20845	6,98%
1,42	2,45%	0,11537	8,68%
1,22	2,75%	0,04269	22,59%

Tableau-A II-6 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température et de hauteur pour le carburant 2 (50% H₂ / 40% CO / 10% CO₂)

Richesse		Température (K)		Hauteur (cm)	
Valeur	Incrtitude	Valeur	Incrtitude	Valeur	Incrtitude
Infinie	---	1 430,5	1,00%	22,20	1,41%
9,01	2,67%	1 559,8	1,00%	13,3	2,08%
5,32	1,97%	1 593,1	1,00%	9,8	2,51%
3,49	1,97%	1 776,5	1,00%	6,29	2,54%
3,04	2,06%	1 799,6	1,00%	6,10	3,03%
2,63	1,89%	1 746,4	1,00%	5,85	2,95%
2,24	2,04%	1 781,9	1,00%	4,91	2,97%
2,13	1,99%	1 751,5	1,00%	4,51	3,63%
1,93	2,00%	1 816,3	1,00%	3,93	2,91%
1,72	2,15%	1 640,2	1,00%	2,88	4,01%
1,62	2,23%	1 876,7	1,00%	2,40	4,63%
1,42	2,45%	1 686,2	1,00%	1,90	6,52%
1,22	2,75%	652,0	1,00%	1,28	8,49%

Tableau-A II-7 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de EINO_x pour le carburant 3 (40% H₂ / 30% CO / 30% CO₂)

Richesse		EINO _x (g/kg de carburant)	
Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Infinie	---	0,02045	2,34%
7,36	3,73%	0,03052	3,21%
4,77	2,76%	0,03415	3,77%
3,52	2,26%	0,03699	4,25%
2,99	2,11%	0,03442	4,51%
2,65	2,18%	0,03737	4,73%
2,32	2,14%	0,03787	5,33%
2,03	2,12%	0,03588	5,76%
1,92	2,06%	0,03510	5,74%
1,77	2,14%	0,03655	6,49%
1,54	2,18%	0,03684	6,56%
1,39	2,46%	0,04707	9,09%
1,23	2,92%	0,04445	13,62%
1,05	3,21%	0,00219	110,85%

Tableau-A II-8 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température et de hauteur pour le carburant 3 (40% H₂ / 30% CO / 30% CO₂)

Richesse		Température (K)		Hauteur (cm)	
Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Infinie	---	918,1	1,01%	13,99	2,29%
9,43	3,69%	1 112,1	1,00%	10,83	1,31%
5,26	2,73%	1 208,3	1,00%	7,86	1,69%
3,52	2,26%	1 335,7	1,00%	5,91	2,00%
2,99	2,11%	1 406,9	1,00%	5,54	2,10%
2,65	2,18%	1 438,8	1,00%	5,06	2,30%
2,32	2,14%	1 440,9	1,00%	4,32	2,58%
2,03	2,12%	1 496,4	1,00%	3,81	3,28%
1,92	2,06%	1 507,3	1,00%	3,60	3,08%
1,77	2,14%	1 513,3	1,00%	3,39	3,40%
1,54	2,18%	1 569,4	1,00%	2,79	3,97%
1,27	2,46%	1 702,6	1,00%	2,04	7,52%
1,01	2,92%	1 685,3	1,01%	1,51	8,14%

Tableau-A II-9 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de EINO_x pour le carburant 4 (35% H₂ / 45% CO / 20% CO₂)

Richesse		EINO _x (g/kg de carburant)	
Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Infinie	---	0,02369	1,87%
8,81	3,72%	0,02888	2,14%
5,38	2,58%	0,04474	2,44%
3,48	2,10%	0,06806	2,90%
2,92	2,21%	0,07381	3,31%
2,57	2,04%	0,07932	3,45%
2,25	2,15%	0,07947	4,12%
2,12	2,09%	0,09113	4,45%
1,97	2,17%	0,09202	4,46%
1,72	2,21%	0,10803	5,36%
1,63	2,28%	0,11034	6,05%
1,39	2,41%	0,13359	6,69%
1,24	2,48%	0,12716	7,82%
1,09	2,74%	0,07946	12,24%

Tableau-A II-10 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température et de hauteur pour le carburant 4 (35% H₂ / 45% CO / 20% CO₂)

Richesse		Température (K)		Hauteur (cm)	
Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Infinie	---	1 269,8	1,01%	18,60	1,64%
8,57	3,10%	1 290,0	1,00%	12,29	1,90%
5,38	2,58%	1 279,1	1,00%	7,99	2,44%
3,48	2,10%	1 497,6	1,00%	6,90	1,91%
2,92	2,21%	1 483,9	1,00%	6,17	2,10%
2,57	2,04%	1 540,0	1,00%	5,68	2,01%
2,25	2,15%	1 508,1	1,00%	4,94	2,37%
2,12	2,09%	1 605,8	1,00%	4,73	2,50%
1,97	2,17%	1 565,8	1,00%	3,93	3,20%
1,72	2,21%	1 544,0	1,00%	3,28	3,69%
1,63	2,28%	1 837,8	1,00%	3,12	3,75%
1,39	2,41%	1 868,3	1,00%	2,23	5,11%
1,24	2,48%	1 802,5	1,01%	1,83	6,03%
1,09	2,74%	1 005,6	1,00%	1,46	7,47%

Tableau-A II-11 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de EINO_x pour le carburant 5 (55% H₂ / 25% CO / 20% CO₂)

Richesse		EINO _x (g/kg de carburant)	
Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Infinie	---	0,03122	1,87%
8,94	3,10%	0,03684	1,87%
6,34	2,72%	0,03615	1,98%
3,57	1,99%	0,05786	3,14%
2,99	1,99%	0,05694	3,58%
2,69	2,00%	0,06076	3,84%
2,22	1,94%	0,05209	4,36%
2,04	2,02%	0,05314	4,88%
1,94	1,97%	0,05923	5,37%
1,74	2,08%	0,06875	6,40%
1,57	2,12%	0,08478	7,20%
1,38	2,30%	0,07061	9,62%
1,23	2,38%	0,05027	14,17%
1,06	2,68%	0,02309	89,82%

Tableau-A II-12 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température et de hauteur pour le carburant 5 (55% H₂ / 25% CO / 20% CO₂)

Richesse		Température (K)		Hauteur (cm)	
Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude	Valeur	Incertitude
Infinie	---	1 276,8	1,00%	20,17	1,43%
8,99	2,65%	1 344,4	1,00%	13,27	2,16%
5,45	2,15%	1 556,0	1,00%	9,00	1,96%
3,57	1,99%	1 656,4	1,00%	6,41	2,59%
2,99	1,99%	1 712,3	1,00%	5,84	2,67%
2,69	2,00%	1 715,7	1,00%	5,28	2,63%
2,22	1,94%	1 754,9	1,00%	4,61	3,14%
2,04	2,02%	1 830,0	1,00%	4,30	2,93%
1,94	1,97%	1 726,4	1,00%	3,46	4,44%
1,74	2,08%	1 614,1	1,00%	3,14	4,03%
1,57	2,12%	1 715,2	1,00%	2,28	4,84%
1,38	2,30%	1 517,2	1,00%	1,58	7,24%
1,23	2,38%	1 056,1	1,00%	1,46	7,72%
1,06	2,68%	767,2	1,00%	1,32	8,57%

ANNEXE III

CALCUL DE L'INCERTITUDE POUR LE CHAPITRE 2

Tableau-A III-1 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température pour le carburant 1 (100% H₂ – Diffusion)

	$z/H_T = 10\%$		$z/H_T = 20\%$		$z/H_T = 40\%$		$z/H_T = 80\%$	
Distance radiale (mm)	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude
0	558	7,13%	1 058	6,01%	1 830	3,30%	1 134	3,02%
1	687	6,10%	1 075	6,04%	1 810	3,31%	1 136	3,03%
2	977	5,47%	1 121	5,80%	1 806	3,76%	1 136	3,03%
3	1 350	4,46%	1 203	5,61%	1 826	3,77%	1 147	3,03%
4	1 722	3,89%	1 350	5,12%	1 878	3,72%	1 132	3,03%
5	1 934	3,62%	1 554	4,62%	1 947	3,66%	1 116	3,03%
6	2 156	3,39%	1 698	4,31%	1 941	3,67%	1 107	3,04%
7	2 299	3,31%	1 898	3,98%	1 981	3,57%	1 063	3,05%
8	2 371	3,20%	1 992	3,69%	1 931	3,49%	1 001	3,04%
9	2 207	2,81%	1 863	3,49%	1 767	3,05%	951	2,72%
10	1 878	2,78%	1 602	3,36%	1 617	3,04%	901	2,71%
11	1 276	2,74%	1 353	2,92%	1 438	2,98%	859	2,72%
12	821	2,72%	1 214	2,85%	1 280	2,93%	811	2,72%
13	566	2,69%	1 076	2,78%	1 174	2,89%	793	2,72%
14	437	2,68%	928	2,74%	1 103	2,86%	767	2,71%
15	361	2,67%	803	2,71%	1 047	2,82%	729	2,72%

Tableau-A III-2 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température pour le carburant 1 à $z/H_T = 20\%$ (100% $H_2 - \phi = 12$ & 6)

Distance radiale (mm)	$\phi = 12$		$\phi = 6$	
	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude
0	1 178	4,91%	1 616	4,34%
1	1 364	4,76%	1 646	4,15%
2	1 464	4,50%	1 732	3,92%
3	1 685	4,00%	1 881	3,68%
4	1 869	3,82%	2 035	3,49%
5	2 098	3,54%	2 197	3,34%
6	2 204	3,43%	2 273	3,23%
7	2 357	3,28%	2 294	3,19%
8	2 338	3,22%	2 102	3,10%
9	2 105	3,17%	1 709	3,09%
10	1 720	3,13%	1 202	3,06%
11	1 216	3,09%	749	2,73%
12	896	2,74%	520	2,71%
13	692	2,72%	439	2,69%
14	567	2,70%	402	2,67%
15	475	2,68%	378	2,66%

Tableau-A III-3 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures de température pour le carburant 1 (100% H₂ – $\varphi = 3$)

Distance radiale (mm)	$z/H_T = 10\%$		$z/H_T = 20\%$		$z/H_T = 40\%$		$z/H_T = 80\%$	
	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude	T (K)	Incertitude
0	1 590	4,14%	1 856	3,76%	2 208	3,23%	1 779	3,10%
1	1 513	4,16%	1 935	3,66%	2 218	3,26%	1 783	3,08%
2	1 509	4,04%	1 958	3,57%	2 291	3,23%	1 664	3,10%
3	1 698	3,72%	2 083	3,38%	2 309	3,20%	1 483	3,08%
4	1 896	3,45%	2 245	3,30%	2 236	3,17%	1 197	3,08%
5	1 911	3,31%	2 266	3,24%	2 026	3,16%	915	2,74%
6	1 640	3,16%	2 082	3,15%	1 766	3,12%	697	2,74%
7	1 062	3,11%	1 625	3,11%	1 417	3,10%	554	2,73%
8	539	3,05%	1 042	3,07%	1 089	3,08%	475	2,72%
9	322	2,70%	594	2,72%	843	2,73%	442	2,72%
10	285	2,68%	398	2,70%	671	2,73%	425	2,71%
11	282	2,66%	353	2,69%	572	2,71%	420	2,69%
12	282	2,65%	340	2,67%	513	2,70%	415	2,68%
13	282	2,65%	332	2,66%	471	2,68%	410	2,67%
14	283	2,65%	328	2,65%	430	2,67%	398	2,66%
15	283	2,65%	322	2,65%	403	2,66%	388	2,66%

Tableau-A III-4 Estimation de l'incertitude globale sur les mesures
de température pour les carburants 2 à 5 ($\varphi = 3 - z/H_T = 20\%$)

	75% H ₂ / 25% CO		50% H ₂ / 50% CO		25% H ₂ / 75% CO		5% H ₂ / 95% CO	
Distance radiale (mm)	T (K)	Incer- titude	T (K)	Incer- titude	T (K)	Incer- titude	T (K)	Incer- titude
0	1 778	5,90%	1 676	4,77%	1 763	4,13%	984	3,64%
1	1 858	5,69%	1 757	4,63%	1 814	4,08%	1 336	3,87%
2	1 846	5,70%	1 863	4,61%	1 922	4,09%	1 783	3,69%
3	1 885	5,55%	1 878	4,91%	1 953	4,26%	1 817	3,94%
4	1 809	5,43%	1 950	4,89%	1 932	4,36%	1 855	3,84%
5	1 385	5,35%	1 775	4,88%	1 582	4,61%	1 408	4,14%
6	652	5,11%	1 240	5,11%	1 065	4,44%	924	3,82%
7	323	5,22%	687	5,00%	570	4,72%	490	4,27%
8	299	5,22%	418	5,07%	373	5,08%	349	4,71%
9	299	5,20%	325	5,21%	328	5,21%	318	4,93%
10	297	5,23%	306	5,23%	320	5,24%	306	5,05%
11	297	5,21%	299	5,28%	318	5,26%	301	5,13%
12	297	5,21%	300	5,28%	319	5,26%	300	5,18%
13	296	5,22%	298	5,27%	316	5,27%	297	5,20%
14	296	5,21%	299	5,27%	317	5,27%	298	5,21%
15	296	5,20%	299	5,27%	315	5,27%	300	5,18%

ANNEXE IV

INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES AU CHAPITRE 2

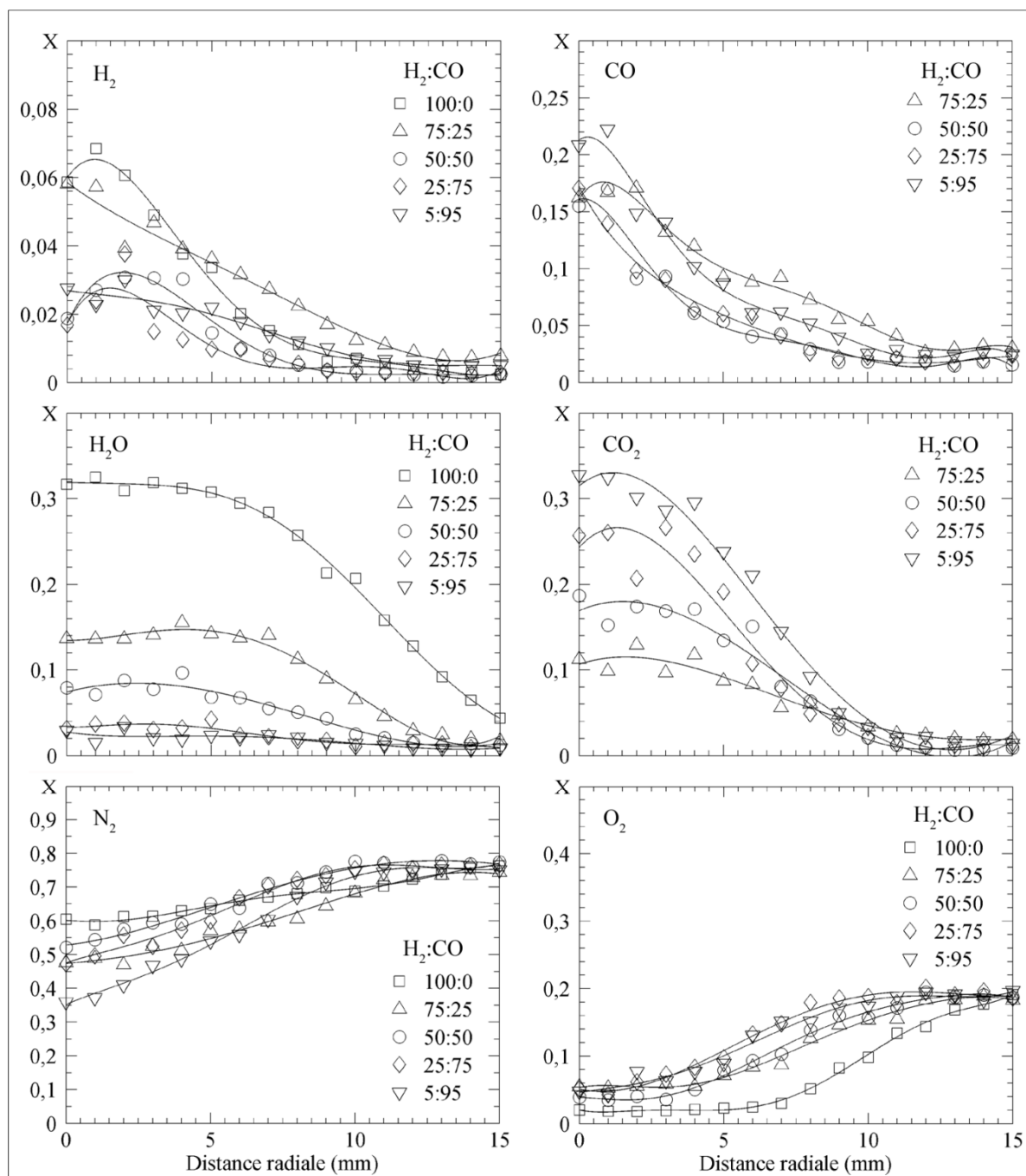


Figure-A IV-1 Profils radiaux des concentrations des espèces chimiques majeures pour des flammes d' H_2/CO à $z/H_T = 40\%$

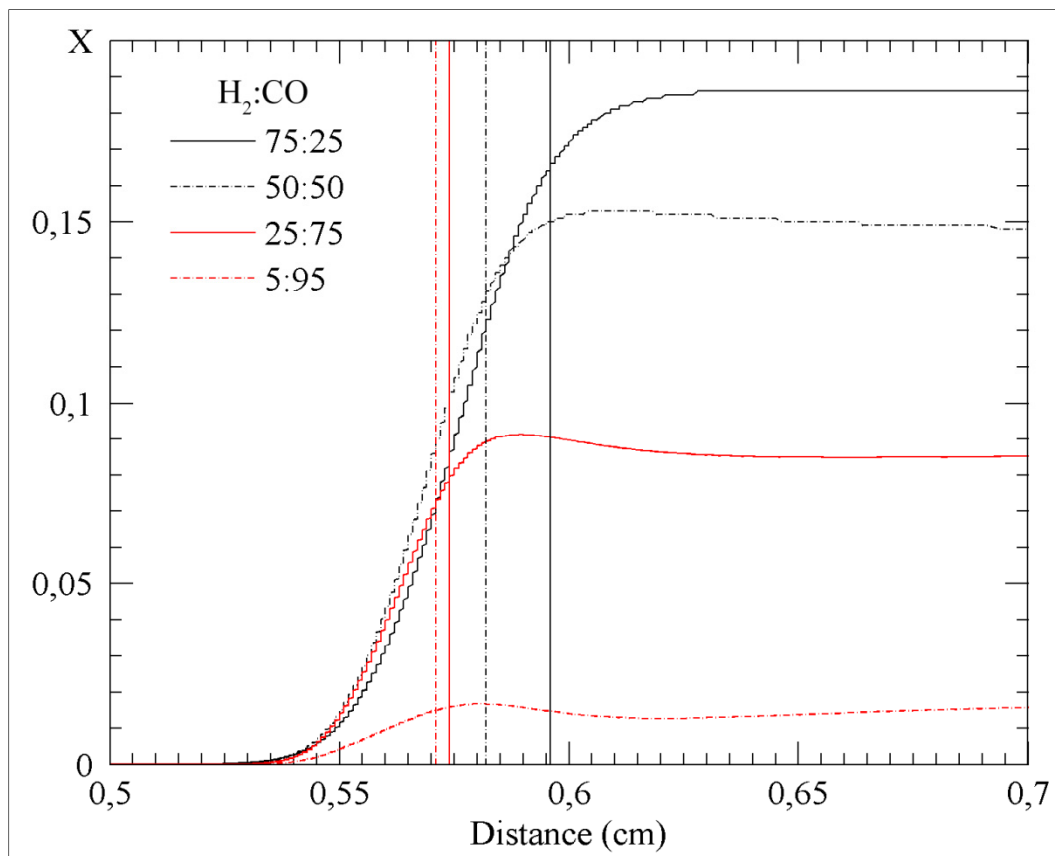


Figure-A IV-2 Profil numérique d' H_2O à $\phi = 3$ pour tous les carburants

ANNEXE V

MÉCANISMES DE CHIMIE

Mécanisme de Davis et al. (2005)

ELEMENTS

O H C N AR HE

END

SPECIES

H₂ H

O OH HCO HO₂

H₂O CO O₂ H₂O₂ CO₂

AR HE N₂

END

REACTIONS

!	A	n	E
H+O ₂ = O+OH	2.644E+16	-0.6707	17041.00
O+H ₂ = H+OH	4.589E+04	2.700	6260.00
OH+ H ₂ = H+H ₂ O	1.734E+08	1.510	3430.00
OH+OH = O+H ₂ O	3.973E+04	2.400	-2110.00
H+H+M = H ₂ +M	1.780E+18	-1.000	0.00
H ₂ /0.0/ H ₂ O/0.0/ CO ₂ /0.0/ AR/0.63/ HE/0.63/			
H+H+H ₂ = H ₂ +H ₂	9.000E+16	-0.600	0.00
H+H+H ₂ O = H ₂ +H ₂ O	5.624E+19	-1.250	0.00
H+H+CO ₂ = H ₂ +CO ₂	5.500E+20	-2.000	0.00
H+OH+M = H ₂ O+M	4.400E+22	-2.000	0.00
H ₂ /2.0/ H ₂ O/6.30/ CO/1.75/ CO ₂ /3.6/ AR/0.38/ HE/0.38/			
O+H+M = OH+M	9.428E+18	-1.000	0.00
H ₂ /2.0/ H ₂ O/12.0/ CO/1.75/ CO ₂ /3.6/ AR/0.7/ HE/0.7/			
O+O+M = O ₂ +M	1.200E+17	-1.000	0.00
H ₂ /2.4/ H ₂ O/15.4/ CO/1.75/ CO ₂ /3.6/ AR/0.83/ HE/0.83/			
H+O ₂ (+M) = HO ₂ (+M)	5.116E+12	0.440	0.00
LOW/6.328E+19 -1.400 0.00/			
TROE/0.5 1E-30 1E+30/			
O ₂ /0.85/ H ₂ O/11.89/ CO/1.09/ CO ₂ /2.18/ AR/0.40/ HE/0.46/ H ₂ /0.75/			
H ₂ +O ₂ = HO ₂ +H	5.916E+05	2.433	53502.00
OH+OH(+M) = H ₂ O ₂ (+M)	1.110E+14	-0.370	0.00
LOW / 2.010E+17 -0.584 -2293.00/			
TROE/ 0.7346 94.00 1756.00 5182.00 /			
H ₂ /2.0/ H ₂ O/6.00/ CO/1.75/ CO ₂ /3.6/ AR/0.7/ HE/0.7/			
HO ₂ +H = O+ H ₂ O	3.970E+12	0.000	671.00

HO ₂ +H = OH+OH	7.485E+13	0.000	295.00
HO ₂ +O = OH+O ₂	4.000E+13	0.000	0.00
HO ₂ +OH = O ₂ + H ₂ O	2.375E+13	0.000	-500.00
DUPLICATE			
HO ₂ +OH = O ₂ + H ₂ O	1.000E+16	0.000	17330.00
DUPLICATE			
HO ₂ +HO ₂ = O ₂ + H ₂ O ₂	1.300E+11	0.000	-1630.00
DUPLICATE			
HO ₂ +HO ₂ = O ₂ +H ₂ O ₂	3.658E+14	0.000	12000.00
DUPLICATE			
H ₂ O ₂ +H = HO ₂ + H ₂	6.050E+06	2.000	5200.00
H ₂ O ₂ +H = OH+ H ₂ O	2.410E+13	0.000	3970.00
H ₂ O ₂ +O = OH+HO ₂	9.630E+06	2.000	3970.00
H ₂ O ₂ +OH = HO ₂ + H ₂ O	2.000E+12	0.000	427.00
DUPLICATE			
H ₂ O ₂ +OH = HO ₂ + H ₂ O	2.670E+41	-7.000	37600.00
DUPLICATE			
CO+O(+M) = CO ₂ (+M)	1.362E+10	0.000	2384.00
LOW/1.173E+24 -2.79 4191./			
H ₂ /2.0/ H ₂ O/12/ CO/1.75/ CO ₂ /3.6/ AR/0.7/ HE/0.7/			
CO+OH = CO ₂ +H	8.000E+11	0.140	7352.00
DUPLICATE			
CO+OH = CO ₂ +H	8.784E+10	0.030	-16.00
DUPLICATE			
CO+O ₂ = CO ₂ +O	1.119E+12	0.000	47700.00
CO+HO ₂ = CO ₂ +OH	3.010E+13	0.000	23000.00
HCO+H = CO+ H ₂	1.200E+14	0.000	0.00
HCO+O = CO+OH	3.000E+13	0.000	0.00
HCO+O = CO ₂ +H	3.000E+13	0.000	0.00
HCO+OH = CO+ H ₂ O	3.020E+13	0.000	0.00
HCO+M = CO+H+M	1.870E+17	-1.000	17000.00
H ₂ /2.0/ H ₂ O/0.0/ CO/1.75/ CO ₂ /3.6/			
HCO+ H ₂ O = CO+H+ H ₂ O	2.244E+18	-1.000	17000.00
HCO+O ₂ = CO+HO ₂	1.204E+10	0.807	-727.00
END			

Mécanisme de Saxena et Williams (2006)

ELEMENTS

O H C N AR HE

END

SPECIES

H₂ HO OH HCO HO₂H₂O CO O₂ H₂O₂ CO₂AR HE N₂

END

REACTIONS

!	A	n	E
H+O ₂ = O+OH	3.520E+16	-0.700	17054.00
O+H ₂ = H+OH	5.060E+04	2.700	6282.00
H ₂ +OH = H ₂ O+H	1.170E+09	1.300	3630.00
H ₂ O+O = OH+OH	7.600E+00	3.800	12754.00
H+H+M = H ₂ +M	1.300E+18	-1.000	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.5/ HE/0.5/			
H+OH+M = H ₂ O+M	4.000E+22	-2.000	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.4/ HE/0.4/			
O+O+M = O ₂ +M	6.170E+15	-0.500	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.2/ HE/0.2/			
H+O+M = OH+M	4.710E+18	-1.000	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.7/ HE/0.7/			
O+OH+M = HO ₂ +M	8.000E+15	0.000	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.7/ HE/0.7/			
H+O ₂ (+M) = HO ₂ (+M)	4.650E+12	0.400	0.00
LOW/5.750E+19 -1.400 0.00/			
TROE/0.5 1E-30 1E+30/			
H ₂ O/16.0/ CO/1.2/ CO ₂ /2.4/ AR/0.70/ HE/0.70/ H ₂ /2.5/			
HO ₂ +H = OH+OH	7.080E+13	0.000	287.00
HO ₂ +H = H ₂ +O ₂	1.660E+13	0.000	812.00
HO ₂ +H = H ₂ O+O	3.100E+13	0.000	1720.00
HO ₂ +O = OH+O ₂	2.000E+13	0.000	0.00
HO ₂ +OH = O ₂ + H ₂ O	2.890E+13	0.000	-502.00
OH+OH(+M) = H ₂ O ₂ (+M)	7.400E+13	-0.400	0.00
LOW / 2.300E+18 -0.900 -1696.00/			
TROE/ 0.735 94.00 1756.00 5182.00 /			
H ₂ /2.0/ H ₂ O/6.0/ CO/1.5/ CO ₂ /2.0/ AR/0.4/ HE/0.4/			
HO ₂ +HO ₂ = O ₂ +H ₂ O ₂	3.020E+12	0.000	1385.00
H ₂ O ₂ +H = HO ₂ +H ₂	4.790E+13	0.000	7954.00
H ₂ O ₂ +H = OH+H ₂ O	1.000E+13	0.000	3583.00
H ₂ O ₂ +OH = H ₂ O+HO ₂	7.080E+12	0.000	1433.00

$\text{H}_2\text{O}_2 + \text{O} = \text{OH} + \text{HO}_2$	9.630E+06	2.000	3989.00
$\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$	4.400E+06	1.500	-740.00
$\text{CO} + \text{HO}_2 = \text{CO}_2 + \text{OH}$	6.000E+13	0.000	22929.00
$\text{CO} + \text{O}_2 = \text{CO}_2 + \text{O}$	1.000E+12	0.000	47626.00
$\text{HCO} + \text{M} = \text{CO} + \text{H} + \text{M}$	1.860E+17	-1.000	16982.00
$\text{H}_2/1.9/ \text{H}_2\text{O}/12.0/ \text{CO}/2.5/ \text{CO}_2/2.5/$			
$\text{HCO} + \text{H} = \text{CO} + \text{H}_2$	1.000E+14	0.000	0.00
$\text{HCO} + \text{O} = \text{CO} + \text{OH}$	3.000E+13	0.000	0.00
$\text{HCO} + \text{O} = \text{CO}_2 + \text{H}$	3.000E+13	0.000	0.00
$\text{HCO} + \text{OH} = \text{CO} + \text{H}_2\text{O}$	5.020E+13	0.000	0.00
$\text{HCO} + \text{O}_2 = \text{CO} + \text{HO}_2$	3.000E+13	0.000	0.00

END

Mécanisme de Sun et al. (2007)

ELEMENTS

O H C N AR HE

END

SPECIES

 H_2 HO OH HCO CH_2O HO_2 H_2O CO O_2 H_2O_2 CO_2 AR HE N_2

END

REACTIONS

!	A	n	E
$\text{H} + \text{O}_2 = \text{O} + \text{OH}$	6.730E+15	-0.500	16670.00
$\text{O} + \text{H}_2 = \text{H} + \text{OH}$	3.820E+12	0.000	7948.00
DUPLICATE			
$\text{O} + \text{H}_2 = \text{H} + \text{OH}$	8.790E+14	0.000	19170.00
DUPLICATE			
$\text{OH} + \text{H}_2 = \text{H} + \text{H}_2\text{O}$	2.170E+08	1.520	3457.40
$\text{OH} + \text{OH} = \text{O} + \text{H}_2\text{O}$	3.350E+04	2.420	-1927.00
$\text{H}_2 + \text{O}_2 = \text{HO}_2 + \text{H}$	7.400E+05	2.430	53502.00
$\text{H}_2 + \text{M} = \text{H} + \text{H} + \text{M}$	2.230E+14	0.000	96070.00
$\text{CO}/1.9/ \text{H}_2/0.0/ \text{H}_2\text{O}/0.0/ \text{CO}_2/3.8/ \text{N}_2/0.0/$			
$\text{H}_2 + \text{H}_2 = \text{H} + \text{H} + \text{H}_2$	9.030E+16	0.000	96070.00
$\text{H}_2 + \text{N}_2 = \text{H} + \text{H} + \text{N}_2$	4.580E+19	-1.400	104400.00
$\text{H}_2 + \text{H}_2\text{O} = \text{H} + \text{H} + \text{H}_2\text{O}$	8.430E+19	-1.100	104400.00
$\text{O} + \text{O} + \text{M} = \text{O}_2 + \text{M}$	6.160E+15	-0.500	0.00
$\text{H}_2/2.5/ \text{H}_2\text{O}/12/ \text{CO}/1.9/ \text{CO}_2/3.8/ \text{AR}/0.0/ \text{HE}/0.0/$			
$\text{O} + \text{O} + \text{AR} = \text{O}_2 + \text{AR}$	1.890E+13	0.000	-1788.00

O+O+HE = O ₂ +HE	1.890E+13	0.000	-1788.00
O+H+M = OH+M	4.710E+18	-1.000	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.75/ HE/0.75/			
H+OH+M = H ₂ O+M	2.210E+22	-2.000	0.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/6.39/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.38/ HE/0.38/			
H+O ₂ (+M) = HO ₂ (+M)	4.650E+12	0.400	0.00
LOW/2.650E+19 -1.300 0.00/			
TROE/0.57 1E-30 1E+30/			
H ₂ O/0.0/ CO/1.9/ CO ₂ /2.4/ AR/0.0/ HE/0.0/ H ₂ /1.49/			
H+O ₂ (+AR) = HO ₂ (+AR)	4.650E+12	0.400	0.00
LOW/6.890E+18 -1.200 0.00/			
TROE/0.51 1E-30 1E+30/			
H+O ₂ (+HE) = HO ₂ (+HE)	4.650E+12	0.400	0.00
LOW/6.890E+18 -1.200 0.00/			
TROE/0.51 1E-30 1E+30/			
H+O ₂ (+H ₂ O) = HO ₂ (+H ₂ O)	4.650E+12	0.400	0.00
LOW/3.630E+19 -1.000 0.00/			
TROE/0.81 1E-30 1E+30/			
HO ₂ +H = O+H ₂ O	1.440E+12	0.000	0.00
HO ₂ +H = OH+OH	6.000E+13	0.000	295.00
HO ₂ +O = OH+O ₂	1.630E+13	0.000	-445.10
HO ₂ +OH = O ₂ +H ₂ O	1.000E+13	0.000	0.00
DUPLICATE			
HO ₂ +OH = O ₂ +H ₂ O	5.800E+13	0.000	3974.00
DUPLICATE			
HO ₂ +HO ₂ = O ₂ +H ₂ O ₂	4.200E+14	0.000	11982.00
DUPLICATE			
HO ₂ +HO ₂ = O ₂ +H ₂ O ₂	1.300E+11	0.000	-1629.30
DUPLICATE			
H ₂ O ₂ (+M) = OH+OH(+M)	3.00E+14	0.000	48480.00
LOW / 1.200E+17 0.000 45500.00/			
TROE/ 0.5 1E-30 1E+30/			
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.00/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.875/ HE/0.875/			
H ₂ O ₂ +H = HO ₂ +H ₂	1.690E+12	0.000	3755.40
H ₂ O ₂ +H = OH+H ₂ O	1.020E+13	0.000	3576.60
H ₂ O ₂ +O = OH+HO ₂	8.430E+11	0.000	3970.00
H ₂ O ₂ +OH = HO ₂ +H ₂ O	1.700E+18	0.000	29410.00
DUPLICATE			
H ₂ O ₂ +OH = HO ₂ +H ₂ O	2.000E+12	0.000	427.20
DUPLICATE			
CO+O+M=CO ₂ +M	3.000E+14	0.000	3000.00
CO+O ₂ = CO ₂ +O	2.530E+12	0.000	47700.00
CO+HO ₂ = CO ₂ +OH	1.150E+05	2.278	17545.00
CO+OH=CO ₂ +H	1.000E+13	0.000	15995.40
DUPLICATE			

CO+OH=CO ₂ +H	9.000E+11	0.000	4570.10
DUPLICATE			
CO+OH=CO ₂ +H	1.010E+11	0.000	59.60
DUPLICATE			
HCO+M = CO+H+M	4.000E+13	0.000	15540.00
H ₂ /2.5/ H ₂ O/6.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/			
HCO+H = CO+H ₂	1.110E+14	0.000	0.00
HCO+O = CO+OH	3.000E+13	0.000	0.00
HCO+O = CO ₂ +H	3.000E+13	0.000	0.00
HCO+OH = CO+H ₂ O	1.020E+14	0.000	0.00
HCO+O ₂ = CO+HO ₂	5.900E+09	0.932	737.00
DUPLICATE			
HCO+O ₂ = CO+HO ₂	1.550E+04	2.380	-1526.00
DUPLICATE			
HCO+HO ₂ = CO ₂ +OH+H	3.000E+13	0.000	0.00
HCO+HCO = H ₂ +CO+CO	3.010E+12	0.000	0.00
HCO+HCO = CH ₂ O+CO	2.700E+13	0.000	0.00

END

Mécanisme de Boivin et al. (2011)

ELEMENTS

O H C N AR HE

END

SPECIES

H₂ H

O OH HCO HO₂

H₂O CO O₂ H₂O₂ CO₂

AR HE N₂

END

REACTIONS

!	A	n	E
H+O ₂ = O+OH	3.520E+16	-0.700	17058.00
REV/7.04E+13 -0.260 143.3/			
O+H ₂ = H+OH	5.060E+04	2.670	6286.00
REV/3.03E+04 2.630 4381.9/			
H ₂ +OH = H ₂ O+H	1.170E+09	1.300	3633.00
REV/1.28E+10 1.190 18689.7/			
H+O ₂ (+M) = HO ₂ (+M)	4.650E+12	0.440	0.00
LOW/5.750E+19 -1.400 0.00/			
TROE/0.5 1E-30 1E+30/			
H ₂ O/16.0/ CO/1.2/ CO ₂ /2.4/ AR/0.70/ HE/0.70/ H ₂ /2.5/			

HO ₂ +H = OH+OH	7.080E+13	0.000	294.00
HO ₂ +H = H ₂ +O ₂	1.660E+13	0.000	821.60
REV/2.69E+12 0.360 55378.8/			
HO ₂ +OH = O ₂ +H ₂ O	2.890E+13	0.000	-496.80
H+OH+M = H ₂ O+M	4.000E+22	-2.000	0.00
REV/1.03E+23 -1.750 118501.0/			
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.38/ HE/0.38/			
H+H+M = H ₂ +M	1.300E+18	-1.000	0.00
REV/3.04E+17 -0.650 103441.8/			
H ₂ /2.5/ H ₂ O/12.0/ CO/1.9/ CO ₂ /3.8/ AR/0.5/ HE/0.5/			
HO ₂ +HO ₂ = O ₂ +H ₂ O ₂	3.020E+12	0.000	1385.00
HO ₂ +H ₂ = H ₂ O ₂ +H	1.620E+11	0.610	23918.00
H ₂ O ₂ (+M) = OH+OH(+M)	2.620E+19	-1.390	51289.80
LOW / 8.150E+23 -1.900 49589.00/			
TROE/ 0.735 94.00 1756.00 5182.00 /			
H ₂ /2.0/ H ₂ O/6.0/ CO/1.5/ CO ₂ /2.0/ AR/0.4/ HE/0.4/			
CO+OH = CO ₂ +H	4.400E+06	1.500	-740.00
REV/2.41E+13 0.220 24983.3/			
CO+HO ₂ = CO ₂ +OH	6.030E+13	0.000	22929.00
HCO+M = CO+H+M	1.860E+17	-1.000	16989.00
REV/3.51E+16 -0.770 1277.8/			
H ₂ /1.9/ H ₂ O/12.0/ CO/2.5/ CO ₂ /2.5/			
HCO+H = CO+H ₂	5.000E+13	0.000	0.00

END

ANNEXE VI

INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES AU CHAPITRE 3

Influence de la chimie cinétique

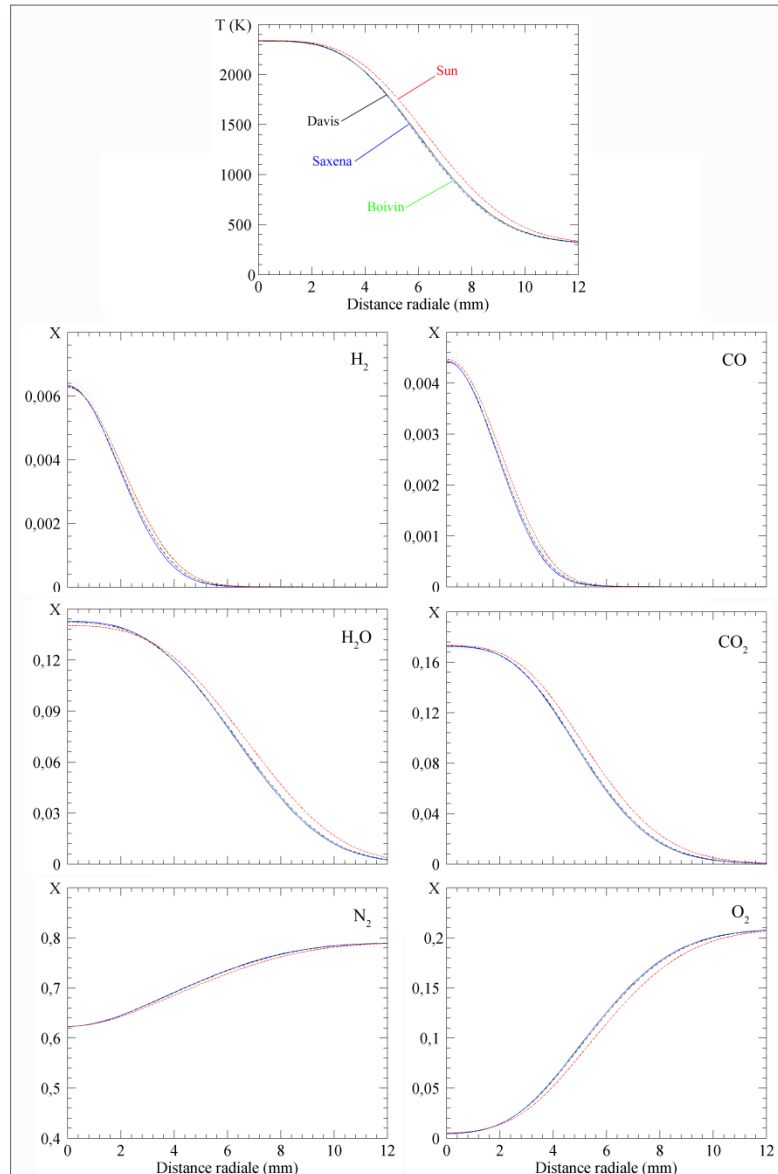


Figure-A VI-1 Comparaison des profils radiaux numériques à $z/H_T = 40\%$ (noir : Davis *et al.* (2005), bleu : Saxena et Williams (2006), rouge : Sun *et al.* (2007), vert : Boivin *et al.* (2011)) pour les espèces chimiques majeures et la température de flamme

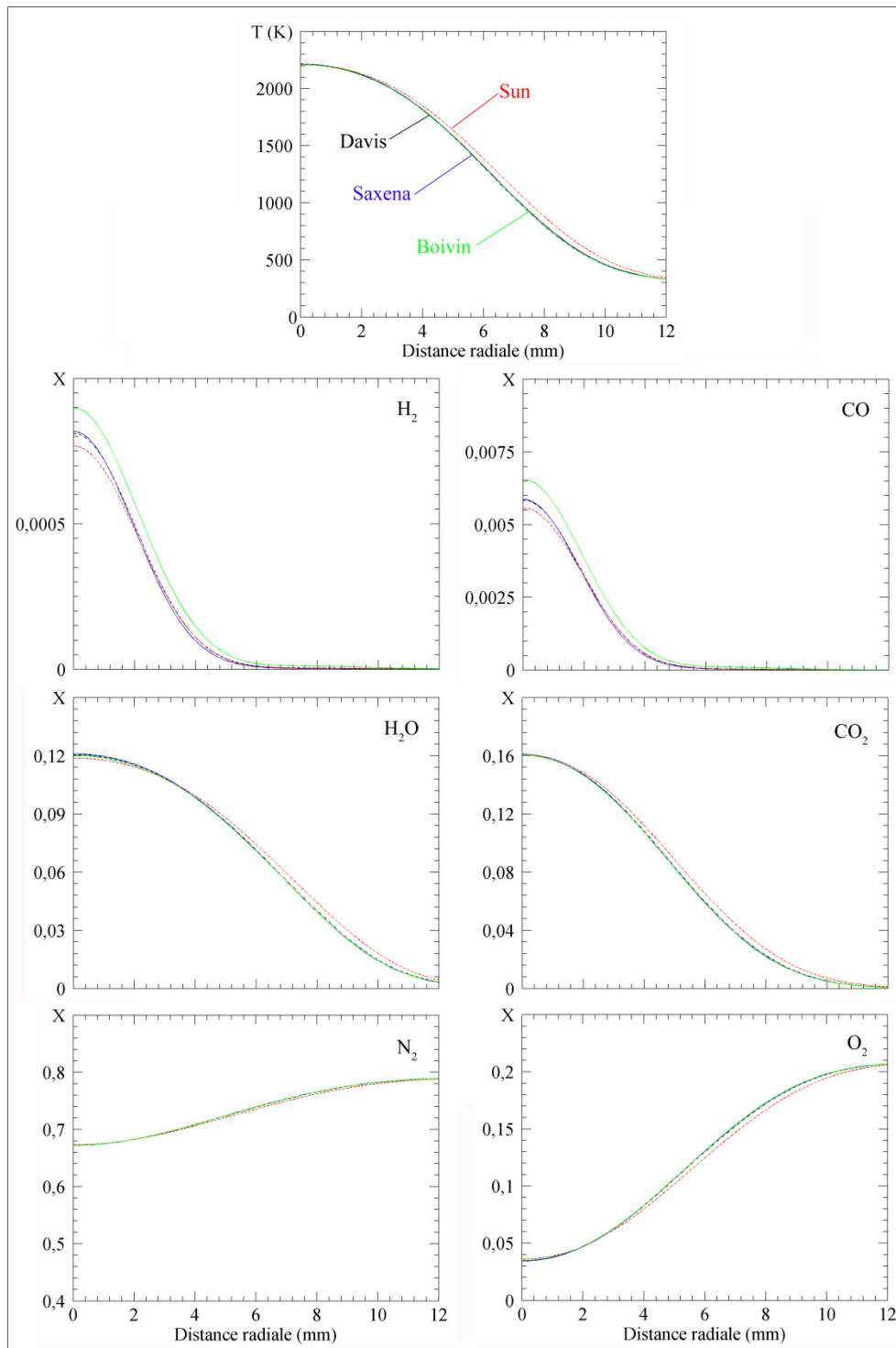


Figure-A VI-2 Comparaison des profils radiaux numériques à $z/H_T = 60\%$ (noir : Davis *et al.* (2005), bleu : Saxena et Williams (2006), rouge : Sun *et al.* (2007), vert : Boivin *et al.* (2011)) pour les espèces chimiques majeures et la température de flamme

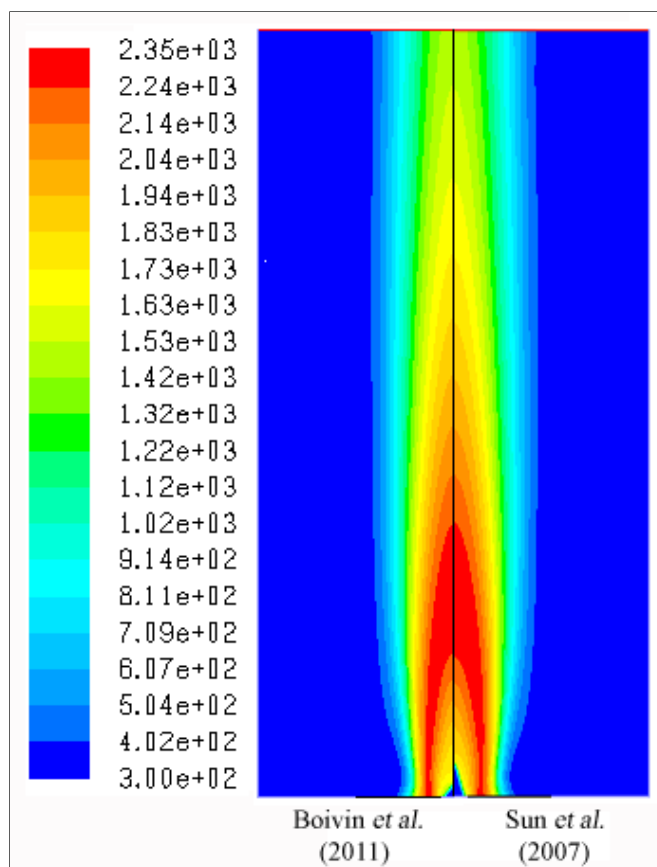


Figure-A VI-3 Effet de la chimie cinétique sur la prédiction de la température de flamme

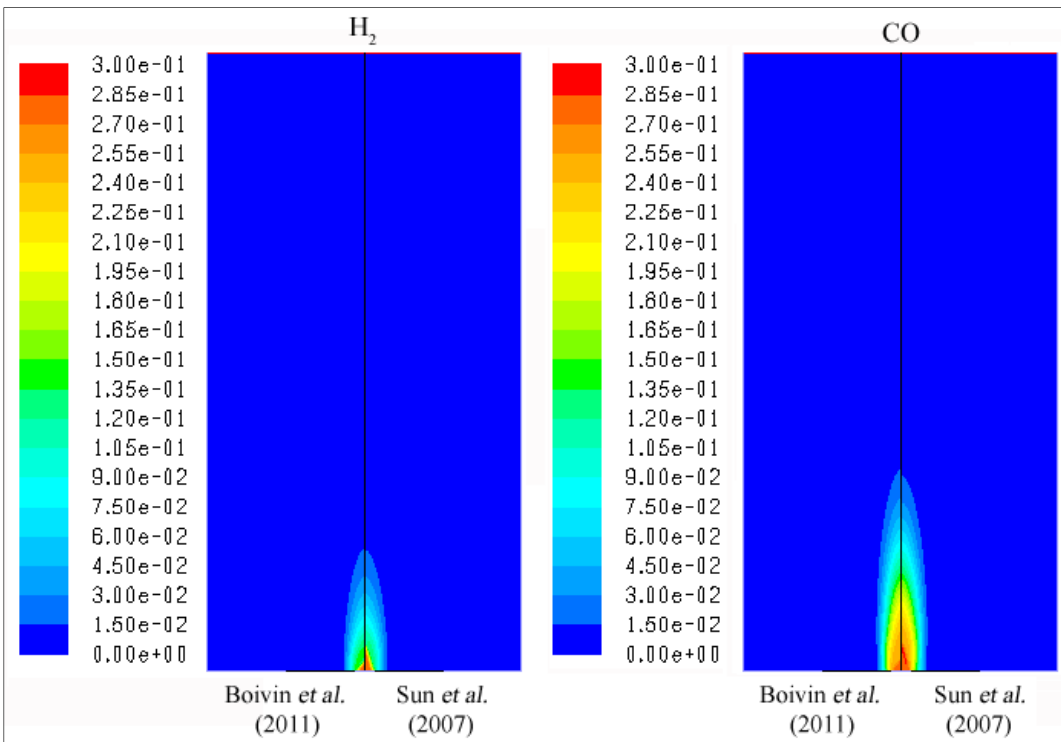


Figure-A VI-4 Effet de la chimie cinétique sur la prédiction des espèces H_2 et CO

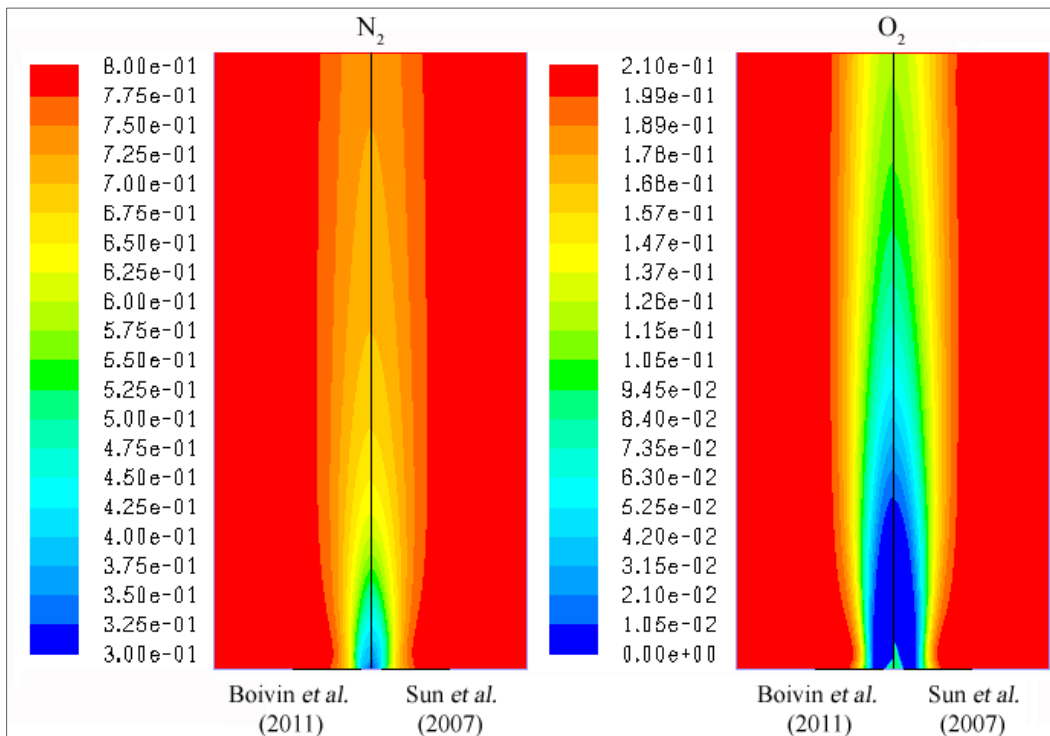


Figure-A VI-5 Effet de la chimie cinétique sur la prédiction des espèces N_2 et O_2

Influence de la radiation

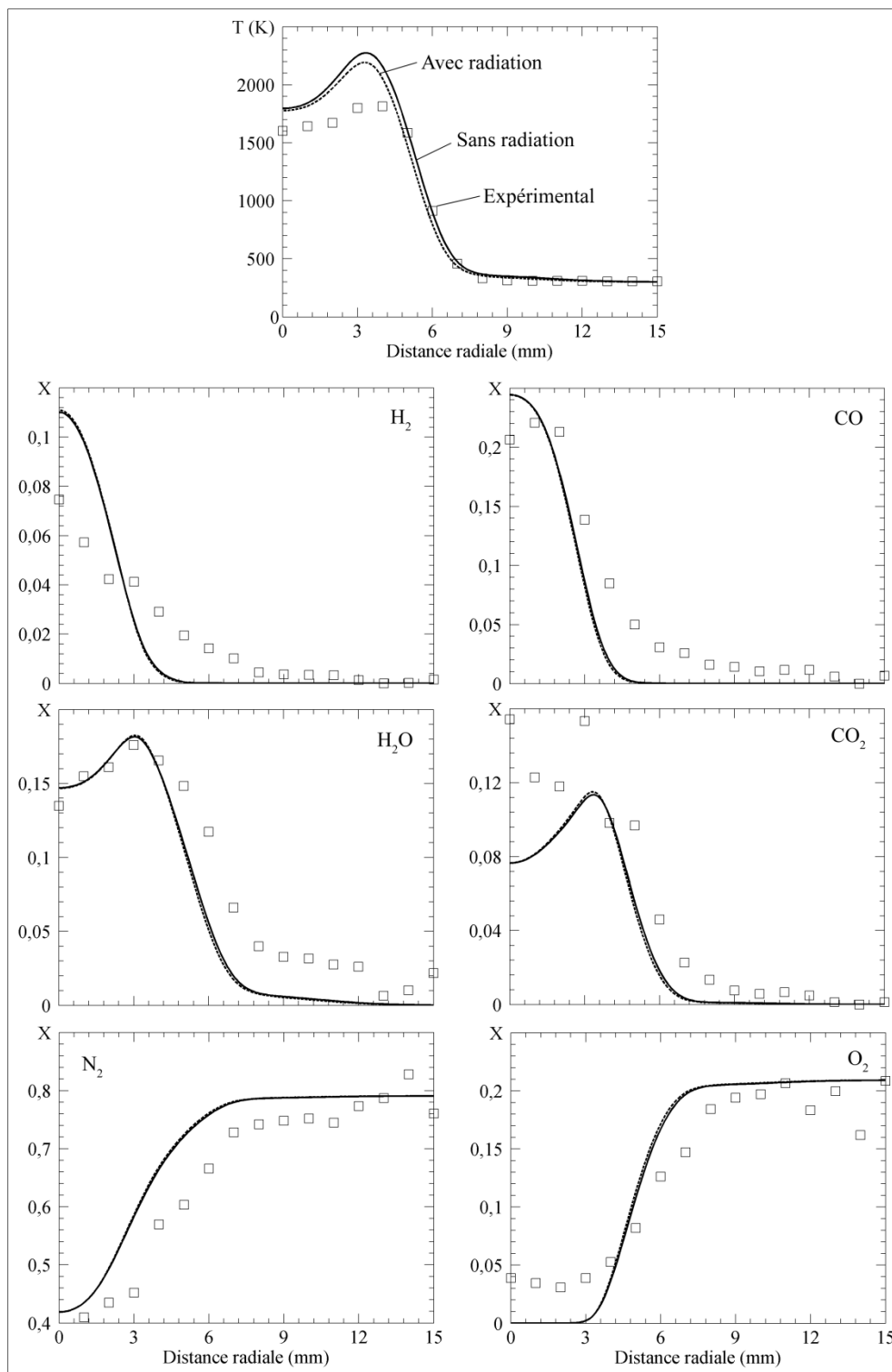


Figure-A VI-6 Comparaison des profils radiaux numériques (lignes) et expérimentaux (symboles) à $z/H_T = 10\%$

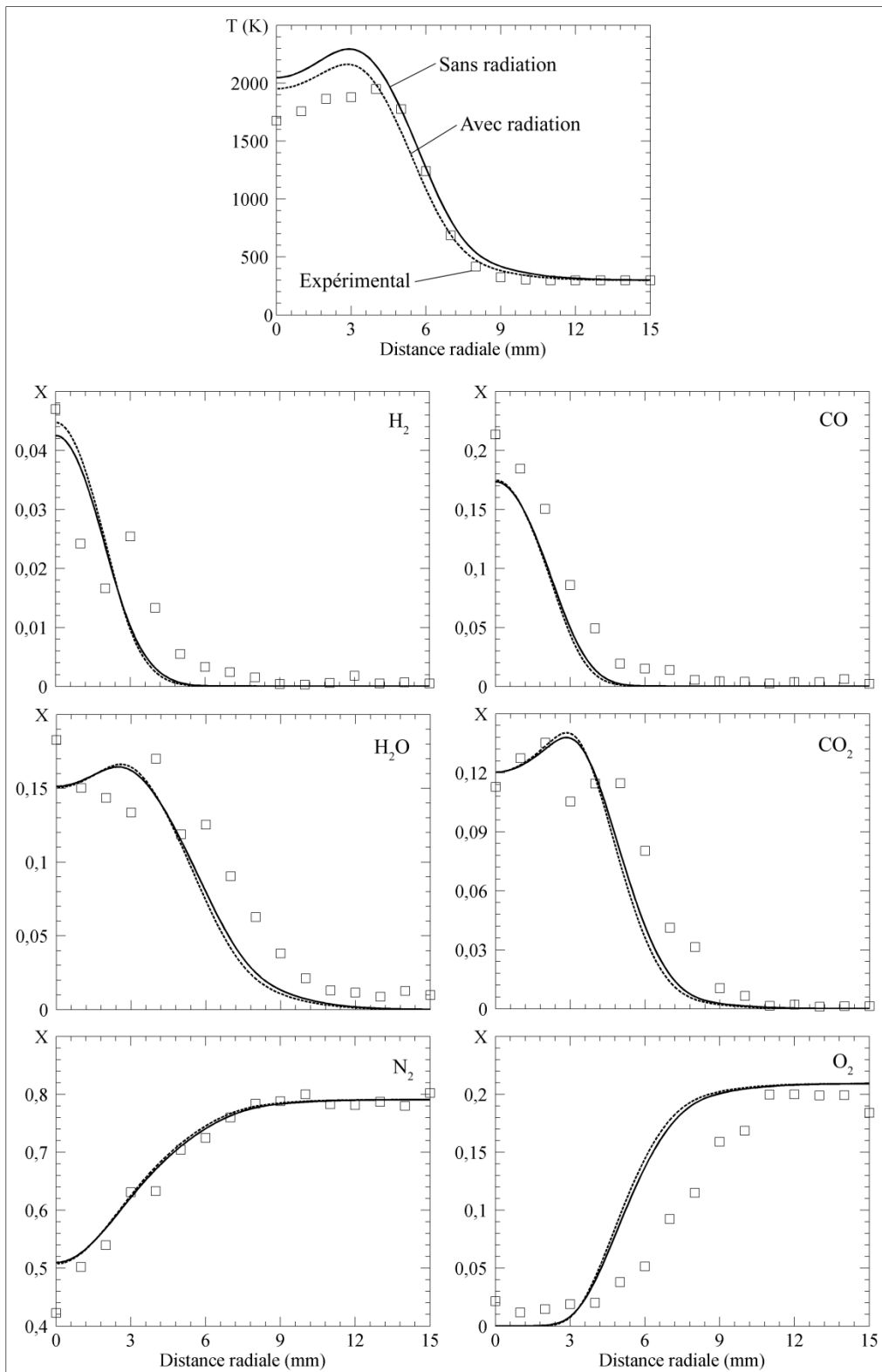


Figure-A VI-7 Comparaison des profils radiaux numériques (lignes) et expérimentaux (symboles) à $z/H_T = 20\%$

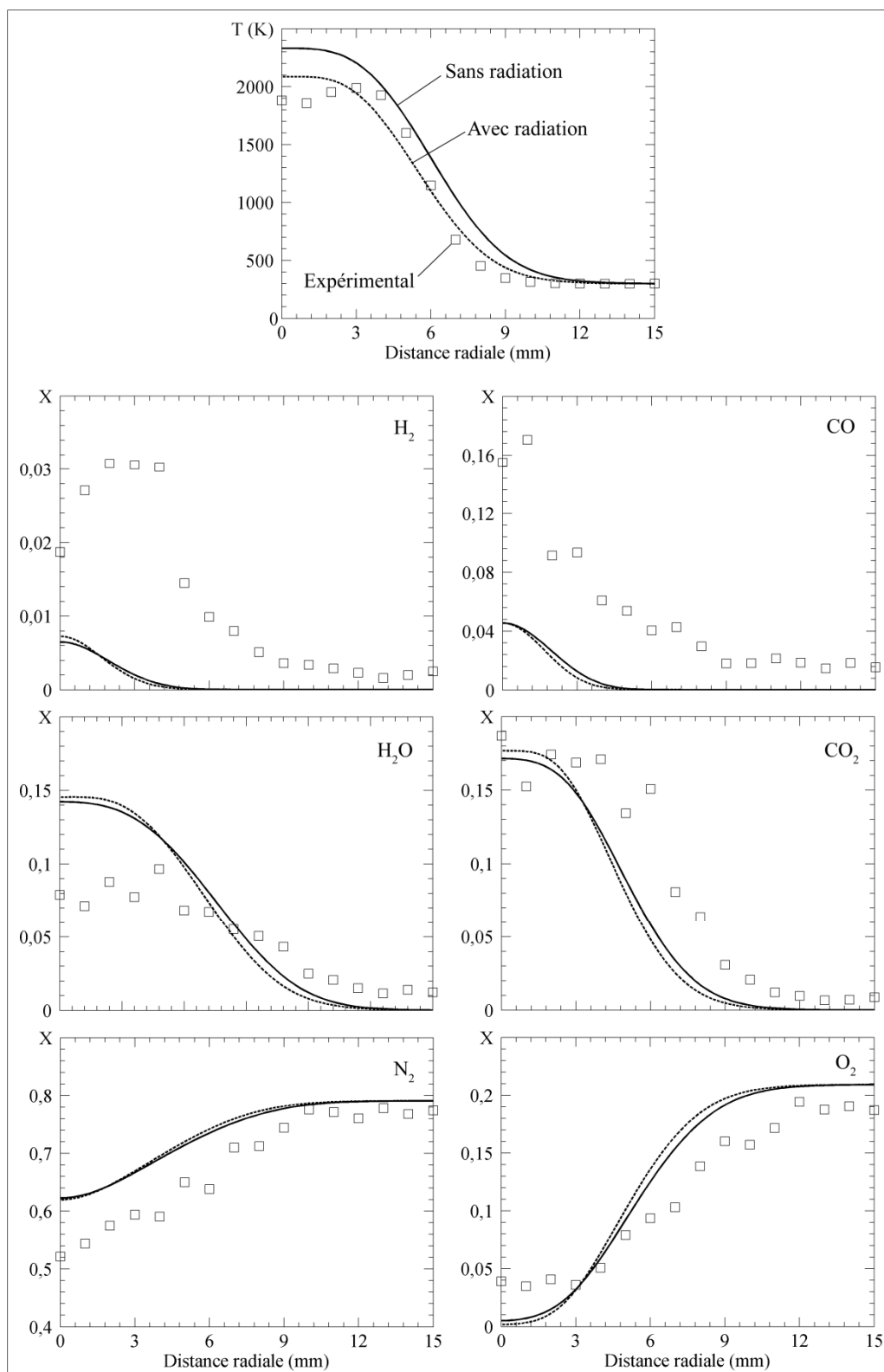


Figure-A VI-8 Comparaison des profils radiaux numériques (lignes) et expérimentaux (symboles) à $z/H_T = 40\%$

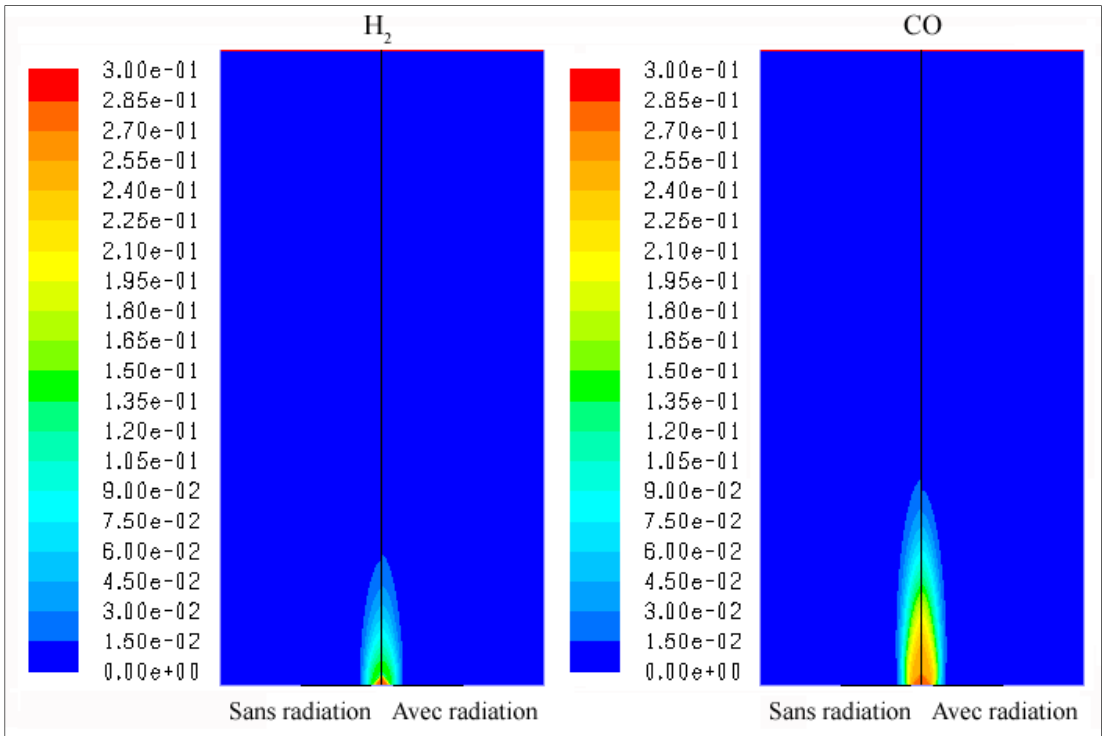


Figure-A VI-9 Effet de la radiation sur la prédiction de l' H_2 et du CO

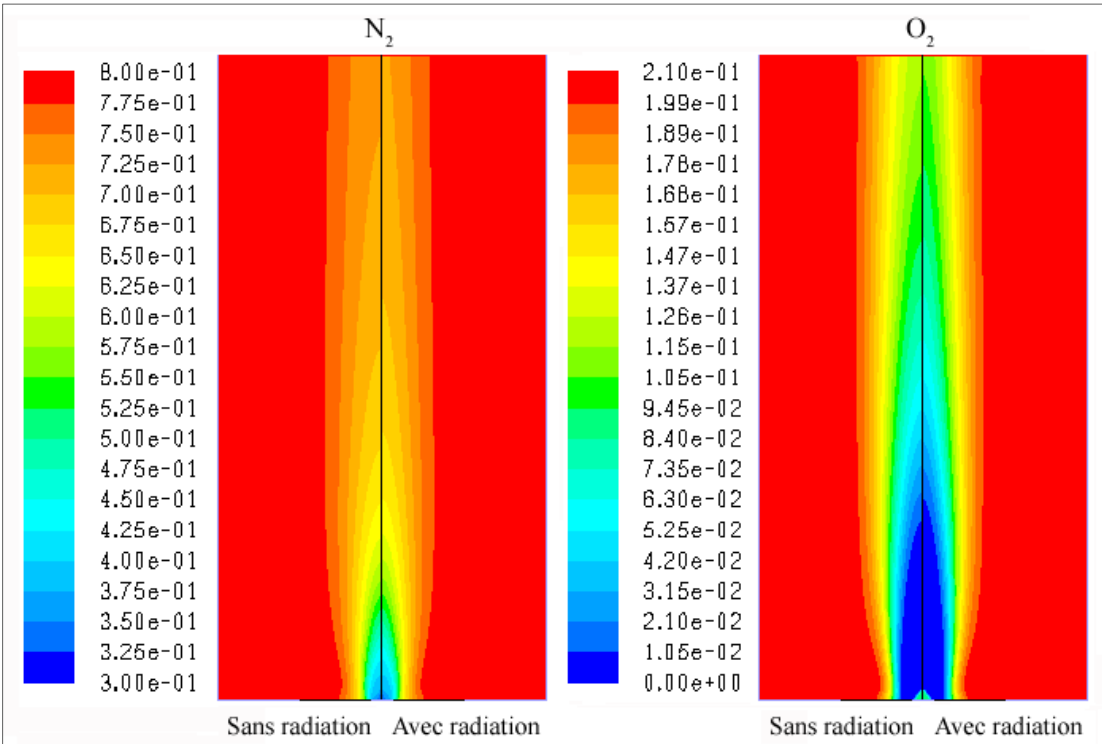


Figure-A VI-10 Effet de la radiation sur la prédiction du N_2 et de l' O_2

Influence du ratio H_2/CO

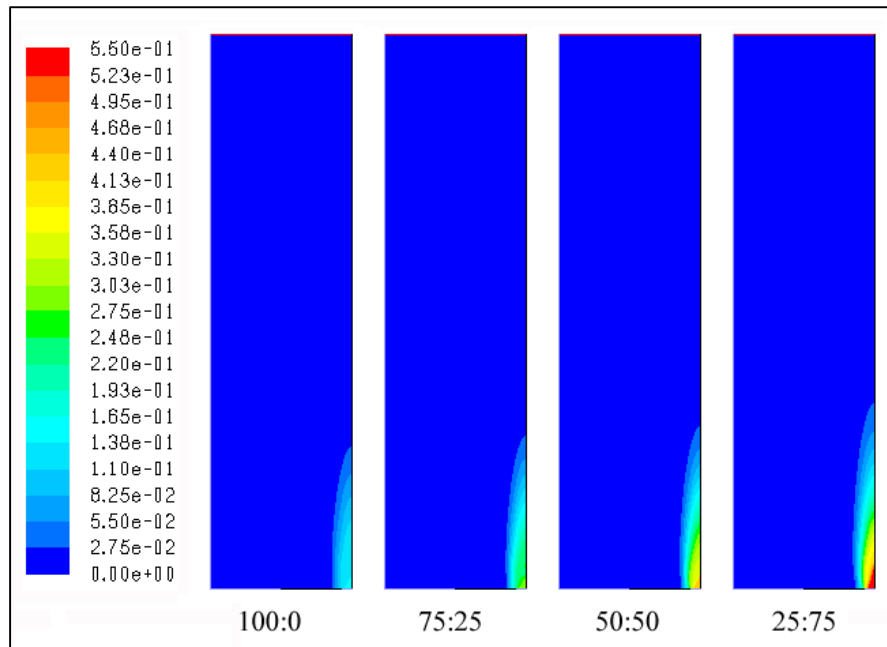


Figure-A VI-11 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques de l' H_2

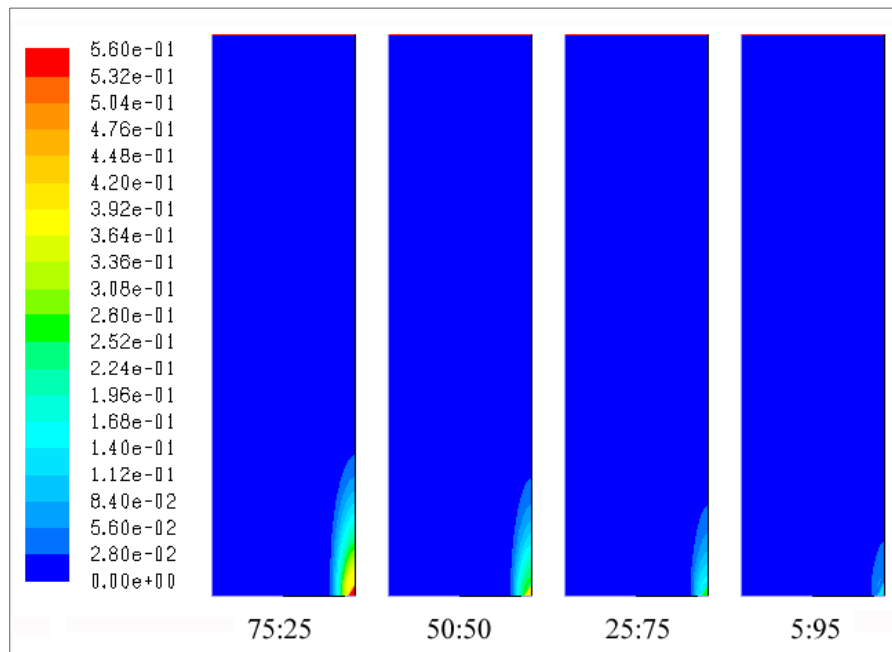


Figure-A VI-12 Influence du ratio H_2/CO sur les isocontours numériques du CO

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Aeschliman, D. P., J. C. Cummings et R. A. Hill. 1979. « Raman spectroscopic study of a laminar hydrogen diffusion flame in air ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 21, n° 4, p. 293-307.
- Allen, Mark T., Richard A. Yetter et Frederick L. Dryer. 1997. « High pressure studies of moist carbon monoxide / nitrous oxide kinetics ». *Combustion and Flame*, vol. 109, n° 3, p. 449-470.
- Barlow, R. S., A. N. Karpetis, J. H. Frank et J. Y. Chen. 2001. « Scalar profiles and NO formation in laminar opposed-flow partially premixed methane/air flames ». *Combustion and Flame*, vol. 127, n° 3, p. 2102-2118.
- Barlow, R. S., N. S. A. Smith, J. Y. Chen et R. W. Bilger. 1999. « Nitric oxide formation in dilute hydrogen jet flames: isolation of the effects of radiation and turbulence-chemistry submodels ». *Combustion and Flame*, vol. 117, n° 1-2, p. 4-31.
- Baulch, D. L., C. J. Cobos, R. A. Cox, C. Esser, P. Frank, Th. Just, J. A. Kerr, M. J. Pilling, J. Troe, R. W. Walker et J. Warnatz. 1992. « Evaluated Kinetic Data for Combustion Modelling ». *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 21, p. 411-734.
- Bennett, Beth Anne V., Charles S. McEnally, Lisa D. Pfefferle et Mitchell D. Smooke. 2000. « Computational and experimental study of axisymmetric coflow partially premixed methane/air flames ». *Combustion and Flame*, vol. 123, n° 4, p. 522-546.
- Bhadraiah, Karnam, et Vasudevan Raghavan. 2011. « Numerical simulation of laminar coflow methane-oxygen diffusion flames: effect of chemical kinetic mechanisms ». *Combustion Theory and Modelling*, vol. 15, n° 1, p. 23 - 46.
- Bidi, M., R. Hosseini et M. R. H. Nobari. 2008. « Numerical analysis of methane-air combustion considering radiation effect ». *Energy Conversion and Management*, vol. 49, n° 12, p. 3634-3647.
- Boivin, P., C. Jiménez, A. L. Sánchez et F. A. Williams. 2011. « A four-step reduced mechanism for syngas combustion ». *Combustion and Flame*, vol. 158, n° 6, p. 1059-1063.
- Bowman, Craig T. 1992. « Control of combustion-generated nitrogen oxide emissions: Technology driven by regulation ». *Symposium (International) on Combustion*, vol. 24, n° 1, p. 859-878.

- Celik, Ismail B. , Urmila Ghia, Patrick J. Roache, Christopher J. Freitas, Hugh Coleman et Peter E. Raad. 2008. « Procedure for Estimation and Reporting of Uncertainty Due to Discretization in CFD Applications ». *Journal of Fluids Engineering*, vol. 130, p. 1-4.
- CHEMKIN 10101. 2010. San Diego: Reaction Design.
- Cheng, T. S., C. Y. Wu, C. P. Chen, Y. H. Li, Y. C. Chao, T. Yuan et T. S. Leu. 2006. « Detailed measurement and assessment of laminar hydrogen jet diffusion flames ». *Combustion and Flame*, vol. 146, n° 1-2, p. 268-282.
- Claramunt, K., R. Cònsul, C. D. Pérez-Segarra et A. Oliva. 2004. « Multidimensional mathematical modeling and numerical investigation of co-flow partially premixed methane/air laminar flames ». *Combustion and Flame*, vol. 137, n° 4, p. 444-457.
- Dasch, Cameron J. 1992. « One-dimensional tomography: a comparison of Abel, onion-peeling, and filtered backprojection methods ». *Applied Optics*, vol. 31, n° 8, p. 1146-1152.
- Datta, A., F. Beyrau, T. Seeger et A. Leipertz. 2004. « Temperature and CO concentration measurements in a partially premixed CH₄/AIR coflowing jet flame using coherent anti-stokes Raman scattering ». *Combustion Science and Technology*, vol. 176, n° 11, p. 1965 - 1984.
- 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.
- de Vries, Jaap, William B. Lowry, Zeynep Serinyel, Henry J. Curran et Eric L. Petersen. 2011. « Laminar flame speed measurements of dimethyl ether in air at pressures up to 10 atm ». *Fuel*, vol. 90, n° 1, p. 331-338.
- Fernández, J. M., A. Punge, G. Tejeda et S. Montero. 2006. « Quantitative diagnostics of a methane/air mini-flame by Raman spectroscopy ». *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 37, n° 1-3, p. 175-182.
- Frassoldati, A., T. Faravelli et E. Ranzi. 2007. « The ignition, combustion and flame structure of carbon monoxide/hydrogen mixtures. Note 1: Detailed kinetic modeling of syngas combustion also in presence of nitrogen compounds ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 32, n° 15, p. 3471-3485.
- Friedman, Raymond. 1953. « Measurement of the temperature profile in a laminar flame ». *Symposium (International) on Combustion*, vol. 4, n° 1, p. 259-263.

- 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.
- Gore, J. P., et N. J. Zhan. 1996. « NO_x emission and major species concentrations in partially premixed laminar methane/air co-flow jet flames ». *Combustion and Flame*, vol. 105, n° 3, p. 414-418.
- Goswami, Mayuri, Evgeniy N. Volkov, Alexander A. Konnov, R.J.M. Bastiaans et L.P.H. de Goey. 2008. *Updated Kinetic Mechanism for NO_x Prediction and Hydrogen Combustion*. Coll. « Seventh Framework Programme », FP7-ENERGY-2008-TREN-1. Eindhoven, The Netherlands: University of Technology, 28 p.
- Groupe Français de Combustion. 2011. *Groupe Français de Combustion : Les mots de la combustion*. En ligne. <<http://www.gfcombustion.asso.fr/index.php?item=glo&page=glossaire.php&langue=fr>>.
- Habibi, A., B. Merci et D. Roekaerts. 2007. « Turbulence radiation interaction in Reynolds-averaged Navier-Stokes simulations of nonpremixed piloted turbulent laboratory-scale flames ». *Combustion and Flame*, vol. 151, n° 1-2, p. 303-320.
- Hariharan, Praveen, Chendhil Periasamy et S. R. Gollahalli. 2007. « Effect of elliptic burner geometry and air equivalence ratio on the nitric oxide emissions from turbulent hydrogen flames ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 32, n° 8, p. 1095-1102.
- Hayashida, Kazuhiro, Kenji Amagai, Keiji Satoh et Masataka Arai. 2006. « Measurement of Fuel Concentration Distribution in a Sooting Flame through Raman Scattering ». *JSME International Journal Series B Fluids and Thermal Engineering*, vol. 49, n° 2, p. 512-519.
- Henderson, Bryan. 2009. *Netpbm*. En ligne. <<http://netpbm.sourceforge.net/doc/index.html>>.
- Hughes-Hallett, Deborah, et Andrew M. Gleason. 1999. *Fonctions d'une variable*. Montréal (Qué.): Chenelière/McGraw-Hill, 596 p.
- Hui, Xin, Zhedian Zhang, Kejin Mu, Yue Wang et Yunhan Xiao. 2007. « Effect of fuel dilution on the structure and pollutant emission of syngas diffusion flames ». In *Proceedings of GT2007 ASME Turbo Expo 2007: Power for Land, Sea and Air* (Montréal, 14-17 mai 2007).
- Inc., Fluent. 2006. *Fluent User Guide*. En ligne. <https://www.sharcnet.ca/Software/Fluent6/html/ug/main_pre.htm>.

- Ishizuka, Satoru, et Yukio Sakai. 1988. « Structure and tip-opening of laminar diffusion flames ». *Symposium (International) on Combustion*, vol. 21, n° 1, p. 1821-1828.
- Kim, Tae J., Richard A. Yetter et Frederick L. Dryer. 1994. « New results on moist CO oxidation: high pressure, high temperature experiments and comprehensive kinetic modeling ». *Symposium (International) on Combustion*, vol. 25, n° 1, p. 759-766.
- Kim, Tae Kwon, B. J. Alder, N. M. Laurendeau et J. P. Gore. 1995. « Exhaust and In-Situ Measurements of Nitric Oxide for Laminar Partially Premixed C₂H₆-Air Flames: Effect of Premixing Level at Constant Fuel Flowrate ». *Combustion Science and Technology*, vol. 110, n° 1, p. 361 - 378.
- Kumabe, Kazuhiro, Toshiaki Hanaoka, Shinji Fujimoto, Tomoaki Minowa et Kinya Sakanishi. 2007. « Co-gasification of woody biomass and coal with air and steam ». *Fuel*, vol. 86, n° 5-6, p. 684-689.
- Kuo, Kenneth K. 2005. *Principles of Combustion*, 2e édition. États-Unis: John Wiley & Sons, Inc., 732 p.
- Kusharin, A. Y., G. L. Agafonov, O. E. Popov et B. E. Gelfand. 1998. « Detonability of H₂/CO/CO₂/Air Mixtures ». *Combustion Science and Technology*, vol. 135, n° 1, p. 85 - 98.
- 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.
- LaVision. 2007. *Product-Manual : DaVis 7.2 Software*. Göttingen: LaVision GmbH, 296 p.
- Law, C. K. 2006. *Combustion Physics*. New York: Cambridge University Press, 722 p.
- Lee, C. E., C. B. Oh et J. H. Kim. 2004. « Numerical and experimental investigations of the NO_x emission characteristics of CH₄-air coflow jet flames ». *Fuel*, vol. 83, n° 17-18, p. 2323-2334.
- Lee, Min Chul, Seok Bin Seo, Jae Hwa Chung, Si Moon Kim, Yong Jin Joo et Dal Hong Ahn. 2010. « Gas turbine combustion performance test of hydrogen and carbone monoxide synthetic gas ». *Fuel*, vol. 89, p. 1485-1491.
- Lee, T. W. 2008. *Thermal and Flow Measurements*. États-Unis: CRC Press, 390 p.
- Lee, T. W., A. Mitrovic et T. Wang. 2000. « Temperature, Velocity, and NO_x/CO Emission Measurements in Turbulent Flames: Effects of Partial Premixing with Central Fuel Injection ». *Combustion and Flame*, vol. 121, n° 1-2, p. 378-385.

- Levy, Yeshayahou, et Liana Kartvelishvili. 2006. « Flame diagnostics based on UV vibrational Raman spectroscopy ». *Optics and Lasers in Engineering*, vol. 44, n° 10, p. 1009-1026.
- Li, J., Z. Zhao, A. Kazakov et F. L. Dryer. 2004. « A comprehensive kinetic mechanism for C₁ species combustion ». *30th International Symposium on Combustion*. WIP Poster 1F1-04.
- Li, Juan, Zhenwei Zhao, Andrei Kazakov, Marcos Chaos, Frederick L. Dryer et James J. Scire. 2007. « A comprehensive kinetic mechanism for CO, CH₂O, and CH₃OH combustion ». vol. 39, p. 109-136.
- Liu, Fengshan, Hongsheng Guo, Gregory J. Smallwood et Ömer L. Gülder. 2002. « Effects of gas and soot radiation on soot formation in a coflow laminar ethylene diffusion flame ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 73, n° 2-5 (2002/6/1/), p. 409-421.
- Liu, Fengshan, Gregory J. Smallwood et Wenjun Kong. 2011. « The importance of thermal radiation transfer in laminar diffusion flames at normal and microgravity ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 112, n° 7, p. 1241-1249.
- Lv, Pengmei, Zhenhong Yuan, Chuangzhi Wu, Longlong Ma, Yong Chen et Noritatsu Tsubaki. 2007. « Bio-syngas production from biomass catalytic gasification ». *Energy Conversion and Management*, vol. 48, n° 4, p. 1132-1139.
- Lyle, K. H., L. K. Tseng, J. P. Gore et N. M. Laurendeau. 1999. « A study of pollutant emission characteristics of partially premixed turbulent jet flames ». *Combustion and Flame*, vol. 116, n° 4, p. 627-639.
- Maas, U., et J. Warnatz. 1988. « Ignition processes in hydrogen---oxygen mixtures ». *Combustion and Flame*, vol. 74, n° 1, p. 53-69.
- Mellish, Bob. 2006, 21 avril. « Polarizer ». In *Wikipedia*. En ligne. <<http://en.wikipedia.org/wiki/Polarizer>>. Consulté le 13 juin 2011.
- Miller, James A., et Craig T. Bowman. 1989. « Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion ». *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 15, n° 4, p. 287-338.
- Mishra, T. K., A. Datta et A. Mukhopadhyay. 2006. « Comparison of the structures of methane-air and propane-air partially premixed flames ». *Fuel*, vol. 85, n° 9, p. 1254-1263.
- Moffat, Robert J. 1988. « Describing the uncertainties in experimental results ». *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 1, n° 1, p. 3-17.

- Mokhov, A. V., B. A. V. Bennett, H. B. Levinsky et M. D. Smooke. 2007. « Experimental and computational study of C₂H₂ and CO in a laminar axisymmetric methane-air diffusion flame ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, n° 1, p. 997-1004.
- Mueller, M. A., R. A. Yetter et F. L. Dryer. 1999. « Flow reactor studies and kinetic modeling of the H₂/O₂/NO_x and CO/H₂O/O₂/NO_x reactions ». vol. 31, p. 705-724.
- 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, n° 1-2, p. 104-119.
- Nguyen, Q. V., R. W. Dibble, C. D. Carter, G. J. Fiechtner et R. S. Barlow. 1996. « Raman-LIF measurements of temperature, major species, OH, and NO in a methane-air bunsen flame ». *Combustion and Flame*, vol. 105, n° 4, p. 499-510.
- Nishioka, M., S. Nakagawa, Y. Ishikawa et T. Takeno. 1994. « NO emission characteristics of methane-air double flame ». *Combustion and Flame*, vol. 98, n° 1-2, p. 127-138.
- Ó Conaire, Marcus, Henry J. Curran, John M. Simmie, William J. Pitz et Charles K. Westbrook. 2004. « A comprehensive modeling study of hydrogen oxidation ». *International Journal of Chemical Kinetics*, vol. 36, p. 603-622.
- Ötügen, M. V., et I. Namer. 1988. « Rayleigh scattering temperature measurements in a plane turbulent air jet at moderate Reynolds numbers ». *Experiments in Fluids*, vol. 6, n° 7, p. 461-466.
- Panton, Ronald L. 1996. *Incompressible Flow*, 2e édition. New York: John Wiley & Sons, Inc., 837 p.
- Park, Jeong, Dae Seok Bae, Min Seok Cha, Jin Han Yun, Sang In Keel, Han Chang Cho, Tae Kwon Kim et Ji Soo Ha. 2008. « Flame characteristics in H₂/CO synthetic gas diffusion flames diluted with CO₂: Effects of radiative heat loss and mixture composition ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 33, n° 23, p. 7256-7264.
- Park, Jeong, Jong-Geun Choi, Sang-In Keel et Tae-Kweon Kim. 2003. « Flame structure and NO emissions in gas combustion of low calorific heating value ». *International Journal of Energy Research*, vol. 27, n° 15, p. 1339-1361.
- Park, Jeong, Dong Jin Hwang, Kang-Tae Kim, Sung-Beom Lee et Sang-In Keel. 2004. « Evaluation of chemical effects of added CO₂ according to flame location ». *International Journal of Energy Research*, vol. 28, n° 6, p. 551-565.

- Petersen, Eric L., Danielle M. Kalitan, Alexander B. Barrett, Shatra C. Reehal, John D. Mertens, David J. Beerer, Richard L. Hack et Vincent G. McDonell. 2007. « New syngas/air ignition data at lower temperature and elevated pressure and comparison to current kinetics models ». *Combustion and Flame*, vol. 149, n° 1-2, p. 244-247.
- Poinsot, T., et D. Veynante. 2005. *Theoretical and numerical combustion*, 2e édition. Philadelphie, PA, USA: Edwards, 522 p.
- Rabenstein, Friedrich, et Alfred Leipertz. 1998. « One-Dimensional, Time-Resolved Raman Measurements in a Sooting Flame made with 355-nm Excitation ». *Applied Optics*, vol. 37, n° 21, p. 4937-4943.
- Ranzi, Eliseo, Angelo Sogaro, Paolo Gaffuri, Giancarlo Pennati et Tiziano Faravelli. 1994. « A Wide Range Modeling Study of Methane Oxidation ». *Combustion Science and Technology*, vol. 96, (2011/07/28), p. 279-325.
- Sanderson, David W. 2010. *Bpmtopnm*. En ligne. <<http://netpbm.sourceforge.net/doc/bmptopnm.html>>.
- Saxena, Priyank, et Forman A. Williams. 2006. « Testing a small detailed chemical-kinetic mechanism for the combustion of hydrogen and carbon monoxide ». *Combustion and Flame*, vol. 145, n° 1-2, p. 316-323.
- Schmidt, Volker. 2002. *Pgmabel*. En ligne. <<http://netpbm.sourceforge.net/doc/pgmabel.html>>.
- Shudo, Toshio, Kento Omori et Osamu Hiyama. 2008. « NO_x reduction and NO₂ emission characteristics in rich-lean combustion of hydrogen ». *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 33, n° 17, p. 4689-4693.
- Smith, G.P., D.M. Golden, M. Frenklach, N.W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldenberg et al. 2006. *GRI Mech. 3.0*. <http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/>.
- Som, S., A. I. Ramírez, J. Hagerdorn, A. Saveliev et S. K. Aggarwal. 2008. « A numerical and experimental study of counterflow syngas flames at different pressures ». *Fuel*, vol. 87, n° 3, p. 319-334.
- 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, n° 1, p. 439-446.
- Sung, Chih-Jen, et Chung K. Law. 2008. « Fundamental Combustion Properties of H₂/CO Mixtures: Ignition and Flame Propagation at Elevated Pressures ». *Combustion Science and Technology*, vol. 180, n° 6 (2011/09/01), p. 1097-1116.

- Sutton, Jeffrey A., et James F. Driscoll. 2004. « Rayleigh scattering cross sections of combustion species at 266, 355, and 532 nm for thermometry applications ». *Optics Letters*, vol. 29, n° 22, p. 2620-2622.
- Toro, V. V., A. V. Mokhov, H. B. Levinsky et M. D. Smooke. 2005. « Combined experimental and computational study of laminar, axisymmetric hydrogen-air diffusion flames ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, n° 1, p. 485-492.
- Tsang, W., et R. F. Hampson. 1986. « Chemical Kinetic Data Base for Combustion Chemistry. Part I. Methane and Related Compounds ». *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 15, p. 1087-1279.
- Turns, S.R. 2000. *An Introduction to Combustion: Concepts and Applications*, 2e édition. United States: McGraw-Hill Publishing Company, 676 p.
- Vandooren, J., P. J. Van Tiggelen et J. F. Pauwels. 1997. « Experimental and modeling studies of a rich $H_2/CO/N_2O/Ar$ flame ». *Combustion and Flame*, vol. 109, n° 4, p. 647-668.
- Vestin, Fredrik, et Per-Erik Bengtsson. 2009. « Rotational CARS for simultaneous measurements of temperature and concentrations of N_2 , O_2 , CO , and CO_2 demonstrated in a CO/air diffusion flame ». *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, n° 1, p. 847-854.
- Wang, Gang, Wen Li, Baoqing Li et Haokan Chen. 2007. « Direct liquefaction of sawdust under syngas ». *Fuel*, vol. 86, n° 10-11, p. 1587-1593.
- Warnatz, J. 1984. « Rate coefficients in the $C/H/O$ system ». In *Combustion Chemistry*, W.C. Gardiner Jr., p. 197-360. New York: Springer-Verlag.
- Yetter, R. A., F. L. Dryer et H. Rabitz. 1991. « A Comprehensive Reaction Mechanism For Carbon Monoxide/Hydrogen/Oxygen Kinetics ». *Combustion Science and Technology*. doi: 10.1080/00102209108951759. 2011/08/25, p. 97-128. <<http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/00102209108951759>>.
- Zhao, Fu-Quan, et Hiroyuki Hiroyasu. 1993. « The applications of laser Rayleigh scattering to combustion diagnostics ». *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 19, n° 6, p. 447-485.