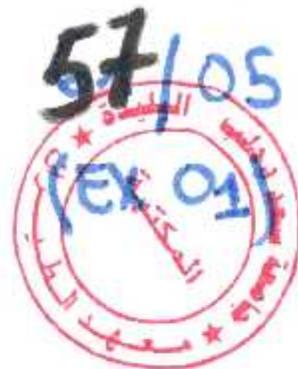


République Algérienne Démocratique et Populaire.
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique.

Université Saad Dahlab, Blida
USDB.

Faculté des sciences.
Département D'Aéronautique.



**Mémoire pour l'obtention
d'un diplôme d'ingénieur d'état en Aéronautique.**
Option : Propulsion

Sujet :

Elaboration d'un logiciel pour la modélisation
d'une flamme plate laminaire
monodimensionnelle prémélangée

Présenté par : Djelloul Abbou M'hamed

Promoteur : Neche Ahmed

Lechani AbdelKader

- 2004/2005 promotion -

Dedication

Louanges, mérite, gratitude, reconnaissance en reviennent à Dieu tout puissant que son nom soit béni et exalté.

Je dédie ce modeste travail :

A mes très chers parents que j'aime profondément pour leur dévouement et leur intérêt constant. Que dieu tout puissant vous protège, et vous accorde longue vie.

A ma fiancée qui n'a cessée de m'encourager tout au long de mon projet.

A mes frères et soeurs pour leurs attentions et leurs encouragements.

A mes amis : Mansour , Walid (avec W non pas avec Ou) et Ramzi (Gobi) pour leurs soutient moral .

A toute ma famille paternelle et maternelle.

Tous mes remerciements a mon très chier ami et partenaire : Lichani A.E.K,

Et enfin à tous qui me sont chers(Salim « ... » ,Hadj Akssas Adel ,Adel l'informaticien

Mustapha, Moh pharmacien et KHames).

Specialement au petit Fethi

Dj.M'hamed

Dedication

Louanges, mérite, gratitude, reconnaissance en reviennent à Dieu tout puissant que son nom soit béni et exalté.

Je dédie ce modeste travail :

A mes très chers parents que j'aime profondément pour leur dévouement et leur intérêt constant. Que dieu tout puissant vous protège, et vous accorde longue vie.

A mon frère Hamza et mes soeurs pour leurs attentions et leurs encouragements.

A mes amis : chafik, hamid, rachid et Ramzi (Gobi) pour leurs soutient moral.

A toute ma famille paternelle et maternelle.

Tous mes remerciements a mon très cher ami et partenaire : dj. Abbou M. hamed

Et enfin à tous qui me sont chers (Salim, Hadj, Adel, Adel l'informaticien, redwan, rafike bachtir, djamel, R, lak,).

Specialement : sarah perla et chihab.

Lechani kadi

Résumé :

La combustion joue un rôle très important dans notre vie puisque c'est elle qui la génère (soleil, feu, combustion qui se passe dans cellule organique ...) les recherche sur ce phénomène sont toujours en cours pour mieux le comprendre donc un meilleur profite de son énergie.

Pour atteindre notre but on doit la modéliser à l'aide des méthodes numériques ce qui est notre thème, et on a utilisé dans notre étude la méthode de Newton amortie.

Summarize :

The combustion plays a very important role in our life since it is it that generates it (sun, fire, combustion that happens in organic cell...) search for them on this phenomenon are always in progress to understand it better therefore a better benefits its energy

To reach our goal one owes the modeling with the help of the numeric methods what is our theme, and one used in our survey the method of Newton absorbed.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	1
Chapitre I	
I. Présentation générale des flammes plates, laminaires prémélangées	4
I.1. Caractéristiques	4
I.2. Caractérisation d'un mélange combustible-comburant.....	5
I.3. Structure de la flamme.....	6
I.4. Choix d'une méthode d'analyse.....	10
I.5. mesure de la vitesse d'écoulement.....	11
I.6. mesure de la concentration des espèces chimiques.....	11
I.6.1. Perturbations liées au système de prélèvement	14
I.6.2. Analyse des espèces stables	14
I.6.3. Analyse des espèces réactives.....	16
I.6.4. Couplage de différentes techniques expérimentales.....	17
I.6.5. Quelques exemples de couplage de techniques expérimentales permettant l'analyse simultanée des espèces stables et réactives	19
I.6.5.1. Couplage du prélèvement par sonde et de l'analyse par résonance paramagnétique électronique et chromatographie en phase gazeuse	19

1.6.5.2. Couplage d'un prélèvement par micro-sonde et analyse par CPG à la mesure d'espèces radicalaires par Fluorescence Induite par Laser (Figure 8) 24

1.6.5.3. Couplage du prélèvement par cône et faisceau moléculaire et de l'analyse par spectrométrie de masse(Figure 11)..... 28

I.7.Mesure de la température 32

I.8. Quelques application de l'étude de la structure des flammes .. 33

I.8.1. Etude des mécanismes de formation et de consommation des oxydes d'azote 33

I.8.2. Mise au point des mécanismes de dégradation des solvants industriels chlorés et de composés organiques volatils 34

I.8.3. Mise au point du mécanisme de combustion du gaz naturel 34

I.8.4. Mise au point des mécanismes de formation des premiers cycles aromatiques 35

Chapitre II

II.1- La modélisation généralité et objectifs 36

II.2- Mécanismes globaux ,semi globaux et de tailles 38

II.2.1. Mécanismes globaux..... 38

II.2.2. Mécanismes semi-globaux 39

II.2.3. Mécanismes chimiques détaillés 40

II.3 - Procédure schématique de mise au point d'un mécanisme chimique de taille pour la modélisation des flammes 41

II.4. Modélisation des flammes plates, laminaires, prémélangées, et monodimensionnelles.....	42
II.4.1. Equations de conservation	43
II.4.2 Méthode de résolution numérique	45
II.4.3 Description de la méthode de NEWTON amortie	45
II.4.4 Méthode de newton amortie.....	50
Chapitre III	
III -1 Résolution du système d'équations	52
III-2 Organigramme.....	61
III-3 Graphes et discussion	60
III-3-1 Graphes.....	71
III-3-2 Discussion.....	77
Conclusion	78
Annexe	
Annexe A : Résultat	

Introduction :

La combustion reste encore aujourd'hui le principal moyen de conversion de l'énergie. Elle est utilisée dans de nombreux systèmes pratique aussi bien pour produire de la chaleur (chaudière ou fours domestiques et industriels), de l'électricité (centrales thermiques, turbines à gaz) que pour le transport (moteur automobiles et aéronautiques, statoréacteurs, moteur fusées) ou encore la destruction de déchets (incensurables).

La combustion intervient aussi dans les problèmes de sécurité (incendies, explosions, détonations accidentelles). La combustion est caractérisée par le développement d'une ou plusieurs réactions chimiques irréversible fortement exothermiques entre un combustible et un comburant, selon le schéma global suivant :



Le dégagement de chaleur se produit généralement dans une zone très mince (les épaisseurs typiques des flammes sont de l'ordre millimètre ou de dixième de millimètre), ce qui induit des gradients thermiques et massiques très élevés (le rapport des température entre réactifs et produit de combustion est couramment de 6à8) et de large variation de la masse volumique sur des échelles très faibles. Les taux de réactions sont numériquement raides et fortement non linéaire car ils suivent des lois d'Arrhenius comportent un facteur exponentiel. Les plus divers, gazeux, liquides ou solides, peuvent être utilisés : bois, butane, propane, essence, gasoil, kérosène,...)

Le comburant est généralement de l'oxygène de l'air, plus exceptionnellement de l'oxygène pur (moteurs fusés, certains fours industriels) qui permet d'atteindre des température plus élevées et d'éviter le stockage ou la manipulation de l'azote inerte mais qui pose des problème de sécurité .

On utilise aussi des mélanges homogènes ou hétérogènes incluant l'oxydant et le réducteur comme par exemple dans les moteurs fusés à propergols solides.

Différents mécanisme de couplage interviennent en combustion. Les schémas cinétiques de la réaction chimique déterminent le taux de consommation du combustible, la formation des produits de combustion et des espèces polluantes. Ils interviennent aussi dans les processus d'allumage, de stabilisation et d'extinction des flammes.

Les transferts de masse, par diffusion moléculaire ou transport convectif, des différentes espèces chimiques sont aussi des éléments importants des processus de combustion. Le dégagement d'énergie dû à la réaction chimique induit des transferts thermiques intenses par conduction, convection ou rayonnement, tant au sein de l'écoulement qu'avec son environnement (parois du foyer, etc....) .cette énergie thermique est ensuite soit utilisée directement, soit convertie en énergie mécanique dans des turbines à gaz ou des moteur à piston.

Bien évidemment, la combustion gazeuse requiert la description de l'écoulement (mécanique des fluides). Dans certains systèmes, d'autres aspects sont à considérer. Deux (combustible ou comburant liquide) ou trois (combustible solide, particules) phases peuvent intervenir. des phénomènes comme la formation de brouillards " Sprays", la vaporisation, la combustion de gouttes doivent alors être pris en compte. La formation de suies, problème difficile au niveau fondamental, fait intervenir des mécanismes de croissance et d'agrégation de petites particules de carbone qui sont ensuite transportées par l'écoulement et en partie consommées plus en aval.

L'une des principales difficultés de la simulation numérique de la combustion réside outre la complexité des phénomène, dans la large gamme d'échelles spatiales et temporelles mises en jeu .certains phénomène chimiques peuvent se produire à des échelles très petites (centième de millimètre) pendant des temps très courts

(10^{-6} à 10^{-10} s) tandis que le foyer peut atteindre plusieurs mètres (fours industriels) voir plusieurs centaines de mètres (incendie) et que les temps de séjour peuvent dépasser plusieurs secondes ou dizaines de secondes.

La prévision des polluants nécessite l'estimation d'espèces chimiques présentes en quelques parties par million (ppm), face aux espèces principales (oxygène et azote de l'air, combustible, vapeur d'eau, dioxyde de carbone) dont la proportion se mesure en dizaines de pourcent.

L'objectif des recherches en combustion est principalement de mieux comprendre les phénomènes complexes qui entrent en jeu pour avoir les modéliser et les maîtriser au niveau de la conception. L'un des objectifs finaux est la simulation numérique complète de systèmes industriels ou de configurations réels. On sait en effet, que les coûts de développement d'un prototype sont extrêmement lourds. Ils devraient pouvoir être sensiblement réduits en optimisant par simulation numérique la géométrie du foyer avant toute réalisation d'un prototype que l'on voudrait aussi proche que possible du produit final. Cette optimisation peut se faire selon plusieurs critères suivant la destination du produit :

Rendement maximal, moindre émissions polluantes, etc. ... il s'agit aussi d'éviter ou de contrôler l'apparition d'instabilités de combustion (couplage entre les modes d'instabilité de l'écoulement, le dégagement de chaleur et le champ acoustique qui conduit à de fortes oscillation des variables du système, augmentant le niveau sonore et vibratoire, les transferts de chaleur vers les parois et pouvant conduire à une destruction rapide de l'installation).

I-Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées :

I.1. Caractéristiques :

Une flamme est le lieu d'une réaction de combustion qui se propage dans un milieu gazeux ; elle est généralement associée à une zone réactive, lumineuse et étroite appelée front de flamme.

Une flamme plane prémélangée correspond à une onde de déflagration (sa vitesse de propagation est inférieure à la vitesse du son) se propageant à une vitesse constante et caractéristique (appelée vitesse de flamme, vitesse de propagation ou vitesse normale de propagation, normale signifiant en régime non turbulent et non détonant, et perpendiculaire à la surface du front de flamme). C'est cette vitesse qui détermine la quantité de mélange qui peut être brûlée par unité de temps. Une telle flamme est dite plane car sa structure ne dépend que d'une seule variable d'espace (milieu monodimensionnel). Elle est dite prémélangée car les réactifs (combustible, comburant et diluant) ont été mélangés avant leur combustion.

La vitesse de propagation de la flamme et la structure de l'onde de déflagration sont alors les caractéristiques fondamentales du mélange combustible - comburant.

Par opposition aux flammes de prémélangées qui se développent au sein d'un mélange explosif, les flammes de diffusion se développent à la surface de séparation entre le gaz combustible et le gaz comburant.

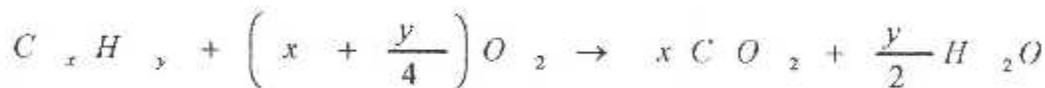
I.2. Caractérisation d'un mélange combustible-comburant :

La composition du mélange est donnée sans ambiguïté par le facteur de richesse Φ et le facteur de dilution a . Le facteur de richesse est égal au rapport de la somme des fractions molaires des combustibles sur celle des comburants, divisé par le même rapport dans les

$$\phi = \frac{\left(\frac{\sum X_{\text{combustible}}}{\sum X_{\text{comburant}}} \right)_{\text{mélange}}}{\left(\frac{\sum X_{\text{combustible}}}{\sum X_{\text{comburant}}} \right)_{\text{stoechiométrique}}}$$

Condition stoechiométrique :

La réaction globale de combustion d'un hydrocarbure C_xH_y avec l'oxygène s'écrit :



Dans ces conditions, nous pouvons écrire mélange

$$\phi = \left(x + \frac{y}{4} \right) \cdot \left(\frac{X_{C_xH_y}}{X_{O_2}} \right)_{\text{mélange}}$$

Dans le cas d'un mélange stoechiométrique la richesse est égale à 1, pour un mélange riche en combustible (combustion réductrice) la richesse est supérieure à 1 et pour un mélange pauvre en combustible (combustion oxydante) la richesse est inférieure à 1. Dans le cas où le prémélange contient plusieurs combustibles ou comburants, il est nécessaire de les prendre tous en compte pour la détermination de Φ .

Le facteur de dilution α est égal à $100 X_i$ où X_i désigne la fraction molaire du gaz inerte utilisé comme diluant (N_2 , Ar , ...).

En plus de ces paramètres, il est nécessaire de considérer les caractéristiques propres au mélange gazeux. On parlera donc de débit total ($l.h^{-1}$), de vitesse d'écoulement ($cm.s^{-1}$) et de flux massique ($g.cm^{-2}.s^{-1}$). Chacune de ces données est étroitement liée au dimensionnement du dispositif expérimental ainsi qu'aux conditions de stabilisation de la flamme plate étudiée.

I.3. STRUCTURE DE FLAMME :

[Lorsqu'un mélange de gaz combustible - comburant se trouve dans un tube ouvert et est enflammé à une des extrémités par une source de chaleur, il entre en régime de combustion vive car la chaleur produite par la réaction ne peut pas être dissipée assez rapidement pour qu'un régime de combustion lente s'établisse] Les radicaux produits par ces réactions de ramification diffusent dans toutes les directions. Ils ne sont en effet pas étriqués dans la direction de l'axe du tube, sauf pour quelques cas de recombinaisons peu importantes parce que peu probables. La chaleur et les radicaux produits localement par la réaction diffusent vers la couche adjacente en avant du front et cette diffusion est suffisante pour que cette couche soit portée à l'inflammation et devienne elle-même une source de chaleur et de radicaux capables d'initier une réaction chimique dans la couche suivante, etc...

[De cette façon une zone de combustion se propage au sein du tube ouvert et à travers le mélange gazeux. Cette zone constitue la flamme, milieu très réactif qui sépare une zone dite de gaz frais (mélange combustible / comburant / diluant n'ayant pas réagi) d'une zone dite de gaz brûlés (produits de combustion issus du processus réactionnel)]

Une flamme est donc le résultat d'un fort couplage entre un processus chimique qui produit rapidement de la chaleur et des espèces réactives, et un processus physique de transport de matière par diffusion et de chaleur par convection. La production de chaleur et de radicaux accélère la réaction tandis que leur transport vers les gaz frais en limite la vitesse]

Quand les deux phénomènes sont d'égale importance, la flamme se propage à vitesse constante. La part relative jouée dans la propagation de la déflagration par la chaleur et par les radicaux est très difficile à distinguer. On considère généralement qu'au-dessus de 1300K, la propagation thermique l'emporte sur la propagation radicalaire.

A l'intérieur de la déflagration, la température augmente d'abord dans une zone de préchauffage où les réactions s'amorcent par suite de la diffusion de la chaleur et des radicaux provenant de la région de combustion proprement dite. Les réactifs sont progressivement consommés ; des espèces intermédiaires apparaissent puis disparaissent tandis que la température augmente exponentiellement et que les produits finaux apparaissent (Figure 2).

La partie visible de la flamme est localisée dans la zone de réaction ; elle est due à l'émission à haute température de radicaux excités tels que CH^* (violet bleu), C_2^* (vert), CHO^* , etc... qui retournent à leur état fondamental. Dans le cas des flammes riches en composés carbonés, l'émission de lumière (blanche, jaune) peut également provenir de particules de carbone incandescentes (suies).

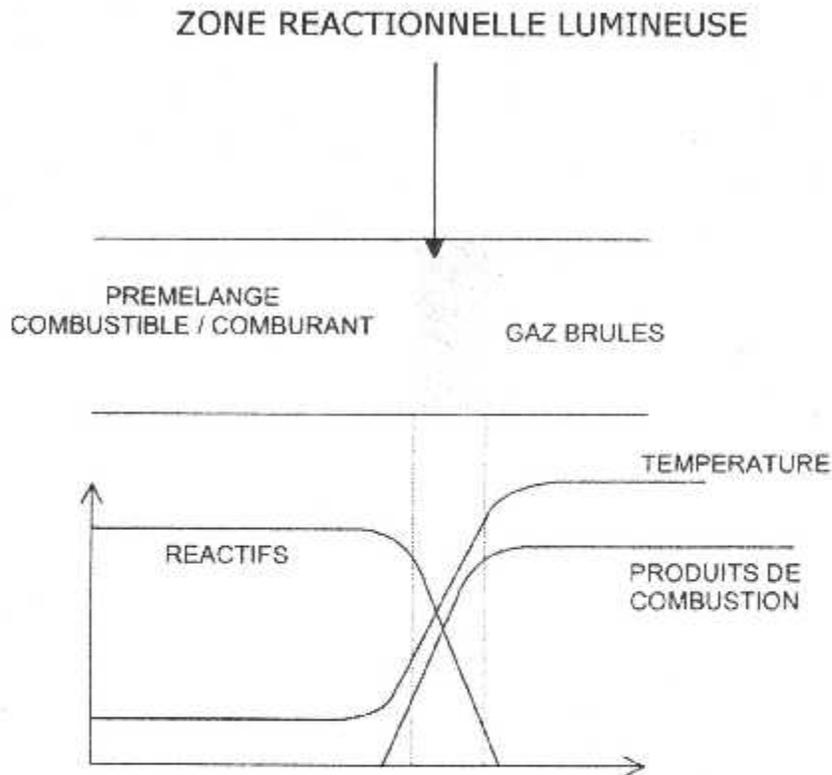


Figure 2 : Structure d'une flamme laminaire prémélangée.

On désigne par structure de flamme l'évolution, en fonction de la distance normale au front de flamme, de la température, de la vitesse d'écoulement et de la concentration des espèces chimiques présentes dans le milieu réactionnel. L'analyse chimique de la structure d'une flamme consiste donc à établir les profils de concentrations d'un maximum d'espèces moléculaires et radicalaires présentes dans la flamme ainsi que le profil de température (Figure 3).

Ces données expérimentales détaillées peuvent ensuite être utilisées pour :

- 1) calculer les vitesses globales d'évolution des espèces et déterminer les paramètres cinétiques de réactions élémentaires à haute température,
- 2) prédire ces profils par modélisation à partir d'un mécanisme chimique postulé au préalable.

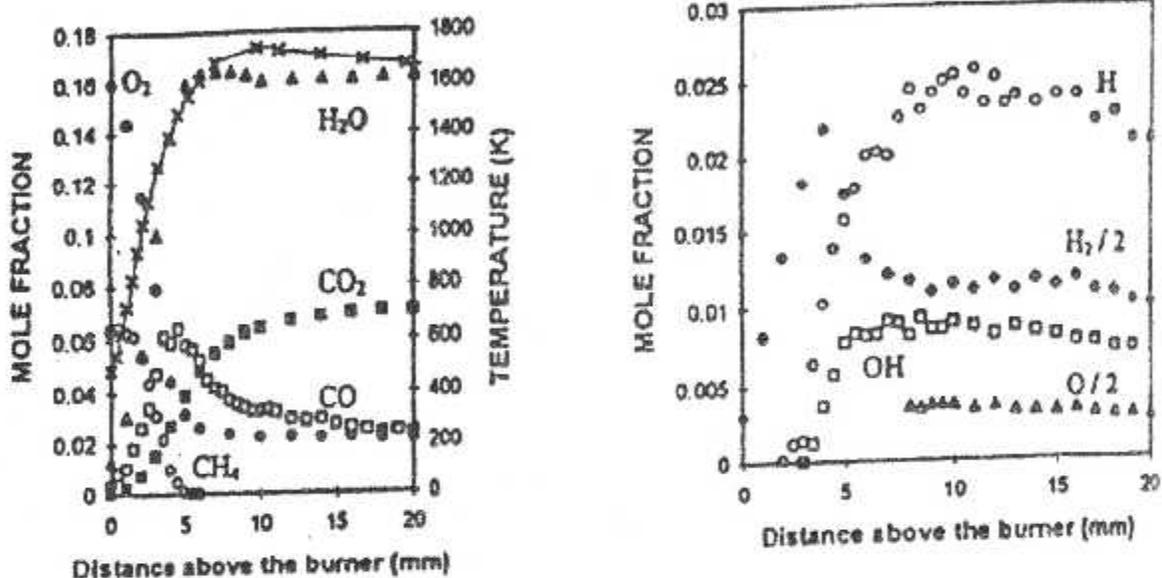


Figure 3 : Structure d'une flamme laminaire prémélangée CH₄/O₂/Ar, $\Phi=1,00$ (Crunelle et al., 1997).

La démarche présentée ici concerne plus particulièrement la modélisation, l'objectif étant finalement de mettre au point et de valider un mécanisme chimique dans différentes conditions expérimentales.

Les flammes plates laminaires prémélangées constituent un support expérimental de choix pour le développement et la mise au point de mécanismes chimiques complexes de combustion. En effet ces conditions expérimentales permettent :

- 1) de travailler sur un milieu mono-dimensionnel ce qui facilite le suivi expérimental de l'évolution de la concentration des espèces,
- 2) de s'affranchir des interactions entre les processus chimiques impliqués et tout l'aspect mécanique des fluides du fait du régime laminaire,
- 3) et donc d'appréhender directement la cinétique de combustion et de dégradation d'un composé chimique spécifique.

Enfin, en travaillant à basse pression, il est possible de dilater la zone réactionnelle de la flamme suffisamment, ce qui permet de disposer d'une meilleure résolution spatiale et donc d'accéder plus facilement aux espèces réactives présentes dans cette zone.

I.4. choix d'une méthode d'analyse :

L'objectif de la méthode d'analyse est d'obtenir un échantillon le plus représentatif possible du milieu réactionnel incluant à la fois les espèces stables moléculaires et les espèces réactives (atomes et radicaux) et dont la composition est bien celle du milieu réactionnel. L'échantillonnage du milieu peut se faire soit par un prélèvement intrusif au moyen d'une microsonde, d'une sonde ou d'un cône (tous les trois généralement en quartz), soit grâce à une méthode non intrusive de diagnostic optique ne nécessitant pas de prélèvement in-situ proprement dit.

L'échantillonnage par prélèvement perturbe thermiquement et hydrodynamiquement le milieu sondé et il doit être associé à une ou plusieurs méthodes d'analyse. Par contre les méthodes de mesure directe faisant appel aux techniques laser (fluorescence induite par laser, absorption,...) non intrusives n'entraînent (à priori) pas de perturbations de la flamme et permettent à la fois d'échantillonner et d'analyser le

milieu réactif. Ces deux méthodes présentent des avantages et des inconvénients qu'il est possible de combler en les associant.

Nous ne décrivons pas ici les techniques de diagnostic laser qui ont été abordées dans les cours précédents relatifs à "l'Approche phénoménologique de la combustion" et aux "Diagnostics laser".

I.5. MESURE DE LA VITESSE D'ÉCOULEMENT :

La technique la plus utilisée est l'Anémométrie Laser Doppler (ALD). Elle nécessite un ensemencement de la flamme par des particules de petites dimensions (de l'ordre du micron). Ces particules doivent être réfractaires pour traverser sans changement de phase (fusion ou vaporisation) le front de flamme. La fréquence de la lumière diffractée par les particules diffère de la fréquence du faisceau incident. La différence de fréquence ainsi observée est proportionnelle à la vitesse de déplacement des particules. Cette méthode présente les avantages d'être ponctuelle, instantanée, et compatible avec le niveau de température atteint dans les flammes.

I.6. MESURE DE LA CONCENTRATION DES ESPÈCES CHIMIQUES :

L'échantillon gazeux prélevé doit être le plus représentatif possible du milieu réactionnel étudié. Pour que la composition de l'échantillon ne varie pas au cours du prélèvement, il faut soit le refroidir, soit abaisser sa pression. L'échantillon prélevé par microsonde, sonde ou cône peut être trempé efficacement mais certaines précautions et conditions d'emploi doivent être prises. Les conditions du prélèvement (type de sonde, méthode de blocage des réactions) sont différentes selon que les espèces analysées sont stables (moléculaires) ou instables (atomes et radicaux).

I.6.1. Perturbations liées au système de prélèvement :

Les perturbations liées à l'intrusion de la sonde dans le milieu réactif sont essentiellement :

- 1) des modifications des propriétés hydrodynamiques de la flamme qui peuvent ainsi donner naissance à un phénomène d'attachement de la flamme aux parois de la sonde,
- 2) des perturbations thermiques par refroidissement dû à la présence de la sonde (création d'un puits de chaleur),
- 3) des modifications dans la composition chimique du gaz prélevé liées à un trempage non performant, ou à des réactions «parasites» notamment entre les espèces chimiques prélevées et la paroi intérieure de la sonde,
- 4) des perturbations dans la diffusion des espèces réactives depuis les gaz brûlés vers les gaz frais.

Ces effets intrusifs sont plus ou moins prononcés selon le type de sonde utilisé. Il existe principalement trois types de sondes d'extraction: les microsondes, les sondes et les cônes (Figure 4). Les perturbations induites sont étroitement liées à leur géométrie ainsi qu'à l'état de surface de leurs parois.

Une microsonde est un tube, généralement en quartz, effilé à l'extrémité dont l'angle au sommet est faible au contraire de la sonde et du cône d'extraction qui présentent un angle au sommet compris entre 40 et 60°. Une sonde présente une géométrie intermédiaire entre la microsonde et le cône.

Dans le cas de la microsonde, les perturbations hydrodynamiques et thermiques sont faibles. Par contre il se produit des réactions de recombinaison des atomes et des radicaux dans la sonde, ce qui modifie la composition des espèces labiles bien sûr, mais aussi de certaines espèces stables lors du prélèvement. Par exemple O_2 et H_2 peuvent être

Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées monodimensionnelles

suresstimés à cause des réactions de recombinaison du type $O+O=O_2$ et $H+H=H_2$. Par contre, Les réactions entre espèces moléculaires et radicaux sont négligeables lors du prélèvement car ces réactions présentent des énergies d'activation élevées (proches de 10 kcal/mol). Ce type de sonde est généralement associé à une détection par Chromatographie en Phase Gazeuse (GC), Spectrométrie de Masse (GCMS) ou Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF).

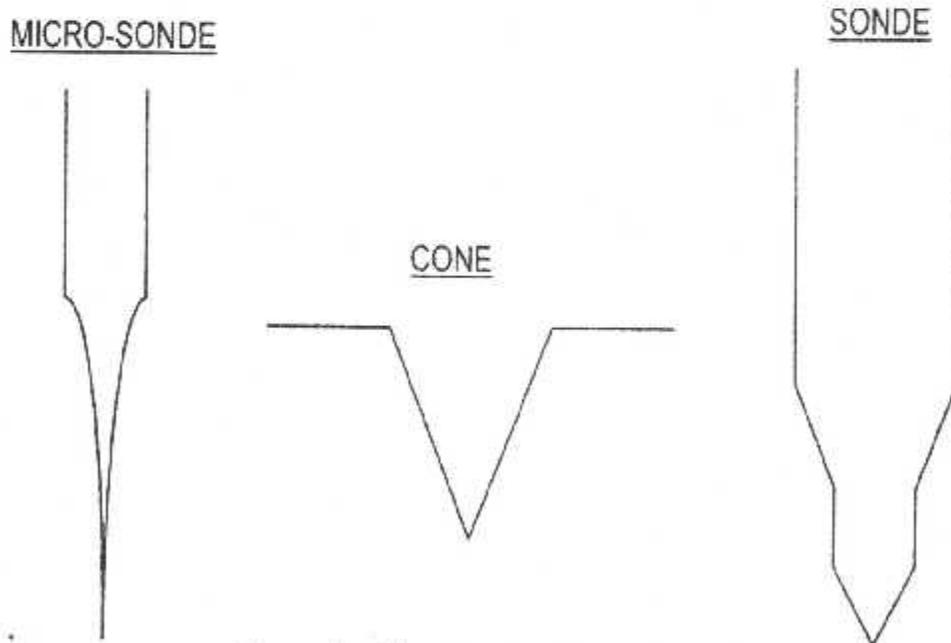


Figure 4 : Microsonde, cône et sonde

Les cônes d'extraction entraînent des perturbations hydrodynamiques et thermiques plus importantes. Cependant l'angle au sommet autorise la formation d'une détente isentropique grâce à un pompage différentiel puissant, qui bloque les réactions au moment du prélèvement, y compris les réactions entre espèces labiles (phénomène de « gel » par faisceau moléculaire (FM)). Par conséquent, le prélèvement ne modifie pas directement la composition chimique du gaz prélevé mais uniquement principalement la structure du milieu réactionnel en aval du cône de prélèvement. La détection est ensuite généralement réalisée par Spectrométrie de Masse (FM/SM).

La sonde (ou sonde intermédiaire) est un compromis entre la microsonde et le cône d'extraction. Les perturbations hydrodynamiques et thermiques sont plus faibles que dans le cas du cône, et plus importantes que dans le cas de la microsonde. Comme pour la microsonde, la composition chimique du gaz prélevé est susceptible d'être modifiée si le temps de vol des espèces entre le point de prélèvement et la détection est long et / ou si la pression en aval de la sonde est trop élevée (destruction des espèces réactives par réactions de recombinaison et / ou de rupture à la paroi). Ces effets sont néanmoins moins prononcés que dans le cas du prélèvement par microsonde. Ce type de sonde peut notamment être associé à une analyse par Résonance Paramagnétique Electronique (RPE), Chromatographie en Phase Gazeuse (GC, GCMS) et Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF).

1.6.2. Analyse des espèces stables :

Ces espèces étant peu réactifs les blocages des réactions au cours du prélèvement n'est pas crucial. On utilise en général une microsonde. Les échantillons prélevés peuvent être stockés et analysés en temps

Différé.

Plusieurs techniques classiques d'analyse des gaz peuvent être utilisées, seules ou en combinaison :

❖ La Chromatographie en Phase Gazeuse (GC) est utilisée uniquement pour la détection des espèces stables, généralement prélevées par une micro-sonde ou sonde. Dans ces conditions, l'étude de l'ensemble des processus chimiques propres à la flamme peut s'avérer limitée. D'autre part, la phase de prélèvement est souvent accompagné d'une étape de compression de l'échantillon avant l'introduction dans le système d'analyse chromatographique, ce qui peut perturber également la composition du gaz prélevé. La quantification des espèces stables est obtenue en comparant l'aire sous le pic d'éluion à celles d'échantillons de concentration connue.

❖ La Spectrométrie de Masse est une technique de détection qui peut être accompagnée d'une séparation préalable des espèces prélevées par chromatographie en phase gazeuse (GC/MS). Dans ce cas, elle est surtout employée pour l'identification des produits formés au cours de la combustion, et ceci à partir de spectres de masse référencés dans une bibliothèque de spectres. Ces méthodes sont utilisées pour établir les profils des espèces moléculaires majoritaires ce qui conduit à l'établissement des principales voies d'oxydation du mécanisme chimique. Une autre utilisation possible de la Spectrométrie de Masse consiste à coupler la détection à un prélèvement par Faisceau Moléculaire (FM/SM).

❖ La spectroscopie Infrarouge est un outil puissant utilisé principalement pour identifier les composés organiques et inorganiques puisque à l'exception de quelques molécules homonucléaires telles que O_2 , N_2 et Cl_2 toutes les espèces moléculaires absorbent dans l'infrarouge de façon

Spécifique. Les spectromètres à Transformée de Fourier pour l'infrarouge

❖ (IRTF) ont comme avantage une sensibilité, une résolution et une vitesse d'acquisition de données particulièrement élevées (spectre complet en moins d'une seconde). Ils peuvent donc permettre un dosage en continu des produits de combustion tels que CO, CO₂, H₂O, les hydrocarbures, les oxydes d'azote, ...

I.6.3. Analyse des espèces réactives :

En ce qui concerne la mesure des espèces réactives, il est nécessaire de bloquer très efficacement les réactions chimiques lors de la phase de prélèvement afin de préserver les espèces réactives. Ce blocage des réactions est généralement obtenu par une détente du gaz à analyser (grande variation de pression entre l'amont et l'aval de la sonde de prélèvement). Si la détente n'est pas isocinétique, des réactions parasites, détruisant les atomes et radicaux, peuvent se produire avant l'analyse et il est alors nécessaire d'en tenir compte. Si la détente est isocinétique, un faisceau moléculaire très représentatif du prélèvement est alors créé. Dans ce cas on utilise une sonde ou un cône de prélèvement pour échantillonner la flamme (Figure 4). La méthode d'analyse des atomes et des radicaux généralement utilisée est la Spectrométrie de Masse, mais également la Résonance Paramagnétique Electronique.

La Résonance Paramagnétique Electronique (RPE) est une technique spectroscopique qui permet l'étude des espèces qui possèdent un ou plusieurs électrons non appariés. Son principe consiste à observer l'absorption de résonance paramagnétique électronique entre deux niveaux d'énergie dégénérés de l'espèce étudiée (effet Zeeman). Les mesures quantitatives sont obtenues en comparant les aires sous les

courbes d'absorption à celles d'échantillons de référence de concentration connue : en phase gazeuse, l'oxygène moléculaire est l'espèce de référence des atomes (cas d'une transition dipolaire magnétique) et le monoxyde d'azote NO est l'espèce de référence des radicaux simples (transition dipolaire électrique). Cette technique peut être utilisée pour la détection des espèces paramagnétiques en phase gazeuse (O_2 , H, O, OH, Cl, SH, SO, NO, ...) ou solide par congélation sur un doigt froid (HO_2 , RO_2). Dans ce dernier cas, la limite de détection est très bonne mais la sélectivité est limitée du fait de la superposition possible des spectres. Le principal avantage de cette technique est qu'elle permet, théoriquement, la mesure quantitative directe des concentrations en atomes et radicaux. Cependant, lorsqu'elle est utilisée en phase gazeuse, la limite de détection impose de travailler à pression relativement élevée dans la sonde d'extraction ($\approx 3 \cdot 10^{-2}$ Torr) et, dans ces conditions, un certain nombre de réactions parasites sont susceptibles de se produire durant le temps de vol des espèces réactives entre le point de prélèvement et le centre de la cavité résonante où a lieu la détection, ce qui peut conduire à une mesure par défaut des espèces réactives. Des méthodes d'extrapolation sont généralement utilisées afin d'en tenir compte. Notons enfin que cette technique ne peut s'appliquer qu'à l'étude des espèces paramagnétiques simples telles que les atomes et les espèces radicalaires diatomiques, qui ne suffisent pas à elles seules, à décrire complètement un système en combustion.

I.6.4. Couplage de différentes techniques expérimentales :

A titre d'exemples, le tableau 1 regroupe les différentes techniques de détermination des concentrations présentées, ainsi que les caractéristiques qui leur sont associées. Aucune de ces techniques n'est idéale, c'est-à-dire universelle, sensible, non perturbatrice et permettant la mesure quantitative directe. Par conséquent, il est souvent nécessaire

de coupler entre elles différentes techniques complémentaires.

Ainsi une analyse par GC ou GCMS peut être avantageusement associée à une mesure par RPE. Dans ce cas, la mesure des espèces stables et des espèces labiles paramagnétiques est possible. De la même façon, l'analyse par GC des espèces stables peut être associée à une détection par FIL à un ou deux photons des espèces radicalaires telles que H, O, OH, CH, CO, NO, ... Une mesure par Spectrométrie de Masse peut aussi être couplée à une détection par RPE pour la mesure quantitative absolue de H, O et OH. Enfin la technique FM/SM peut être associée à une analyse par GC et GCMS dans le cas des espèces présentes en très faible quantité (par exemple les hydrocarbures à trois atomes de carbone dans une flamme basse pression méthane-air) ou pour des espèces de masse voisine (C_2H_4 , CO, N_2) ou de même masse (isomères) qu'il est parfois difficile d'étudier séparément par Spectrométrie de Masse.

<u>Techniques expérimentales</u>	<u>Principales caractéristiques</u>
GC-GCMS*	concentration des espèces stables uniquement méthode perturbatrice mesure simultanée de toutes les espèces prélevées calibrage direct
FM/SM*	concentration des espèces stables et réactives méthode perturbatrice
RPE*	concentration des espèces paramagnétiques uniquement méthode perturbatrice calibrage direct
Emission / Absorption	concentration de certaines espèces stables et réactives méthode non perturbatrice calibrage délicat résolution spatiale insuffisante
DRS	concentration des espèces stables méthode non perturbatrice mesure simultanée des concentrations peu sensible bonne
FIL	concentration des espèces qui fluorescent (certaines espèces réactives) méthode non perturbatrice sensible calibrage délicat bonne résolution spatiale

Tableau 1 : Caractéristiques des différentes techniques expérimentales de détermination des concentrations des espèces chimiques dans une flamme (l'indice * indique que la résolution spatiale est fonction de la sonde de prélèvement)

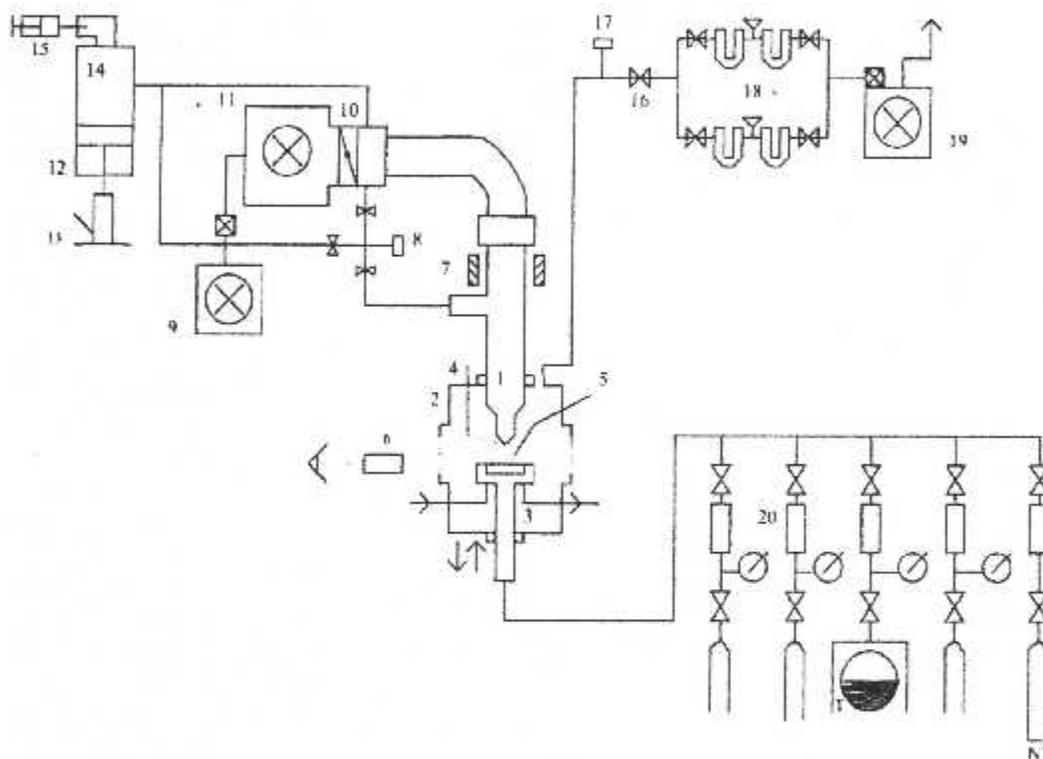
I.6.5. Quelques exemples de couplage de techniques expérimentales permettant l'analyse simultanée des espèces stables et réactives :

I.6.5.1. Couplage du prélèvement par sonde et de l'analyse par résonance paramagnétique électronique et chromatographie en phase gazeuse :

Le schéma du dispositif expérimental type utilisé est représenté sur la figure 6. Dans ce cas la sonde de prélèvement (Figure 5) est constituée d'un tube de quartz de large de diamètre (25 mm) prolongé d'un petit

Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées monodimensionnelles

tube de quartz (11 mm) dont l'extrémité conique forme un angle de 40° et présente un trou de l'ordre d'environ 0,1mm. La sonde traverse une cavité résonante RPE à large accès permettant la mesure simultanée des atomes et des radicaux simples en phase gazeuse et elle est placée dans l'entrefer d'un électroaimant.

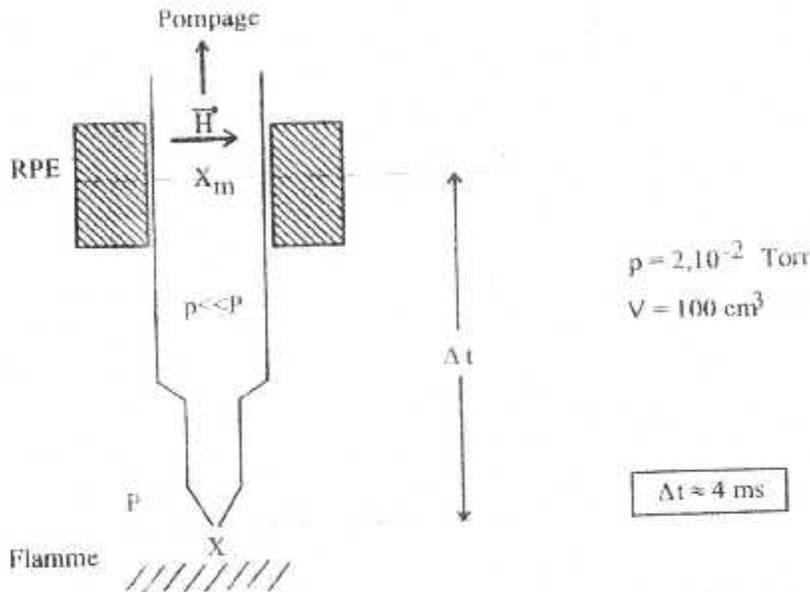


- | | |
|-------------------------------------|---|
| 1. Sonde de prélèvement en quartz | 12. Piston |
| 2. Enceinte étanche | 13. Vérin à main |
| 3. Brûleur | 14. Enceinte de prélèvement des gaz |
| 4. Thermocouple | 15. Seringue à gaz (à système d'analyse) |
| 5. Allumeur | 16. Vanne de réglage (pression brûleur) |
| 6. Lunette de visée | 17. Jauge capacitive |
| 7. Cavité résonante RPE | 18. Piège à azote liquide |
| 8. Jauge de pression capacitive | 19. Pompe primaire à palettes |
| 9. Pompe primaire à palettes | 20. Régulateurs de débit massique |
| 10. Vanne réglable de type Papillon | 21. Enceinte en acier inoxydable chauffée |
| 11. Pompe secondaire de type Roots | |

Figure 5 : Schéma du dispositif expérimental

Lors de l'échantillonnage de la flamme, à travers le trou de la sonde, l'écoulement des gaz du brûleur ($P = 40$ Torr) vers la sonde maintenue à basse pression ($p = 2 \cdot 10^{-2}$ Torr) se fait à très grande vitesse. Cette variation de pression provoque une diminution de température importante ($1500 \text{ K} \rightarrow 300 \text{ K}$) qui permet de bloquer les réactions. Le rapport des pressions P/p n'étant pas suffisant pour obtenir un flux gazeux supersonique dans la sonde et pour donner naissance à un faisceau moléculaire, des réactions parasites détruisent cependant les espèces réactives telles que H, O, Cl, S, SH, SO, OH, ... pendant la phase de prélèvement; il est donc indispensable d'en tenir compte. Les espèces réactives ont une durée de vie $\Delta\tau$ très courte et il est donc important que $\Delta\tau$ soit très supérieure au temps de vol Δt mis par l'espèce envisagée pour parcourir la distance comprise entre l'extrémité de la sonde (où a lieu le prélèvement) et le centre de la cavité résonante RPE (où a lieu la détection) pour pouvoir accéder à sa concentration dans la flamme (à l'endroit du prélèvement). Pour que les fractions molaires mesurées X_m correspondent à celles de la flamme X, il est indispensable que $\Delta t \ll \Delta\tau$.

Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées monodimensionnelles



Relation entre la durée de vie $\Delta\tau$ et le temps de vol Δt des espèces dans la sonde

Figure 6: Relation entre la durée de vie $\Delta\tau$ et le temps de vol Δt des espèces dans la sonde

Différentes réactions qui contribuent à une diminution des espèces réactives sont susceptibles de se produire durant l'intervalle de temps Δt . La disparition des espèces peut intervenir soit par destruction à la paroi, soit par réaction avec une molécule M, soit par réactions de recombinaison biradicalaire. En supposant que l'écoulement dans la sonde peu être assimilé à un écoulement piston, il est possible d'établir les différentes lois d'évolution de X_m avec la pression p dans la sonde selon ces différentes réactions (Tableau 2).

Réaction de rupture hétérogène à la paroi	k $X \rightarrow \text{rupture à la paroi}$	$X_m = X \exp(-Ap)$
Réaction avec une molécule M	$X + M \xrightarrow{k} P$	$X_m = X \exp(-Bp^2)$
Réaction de recombinaison biradicalaire	$X + Y \xrightarrow{k} P$	$\frac{1}{X_m} = Cp^2 + \frac{1}{X}$

A, B et C sont des constantes dépendant notamment de la géométrie de la sonde, de l'efficacité de destruction des radicaux à la paroi et des espèces qui diffusent

Tableau 2: Différentes lois d'évolution de la fraction molaire d'une espèce en fonction de la pression dans la sonde selon la réaction à laquelle elle participe.

Les réactions bimoléculaires ou biradicalaires peuvent être réduites en diminuant la pression p dans la sonde qui doit cependant être suffisante pour conserver une bonne sensibilité lors de la détection RPE. Afin de minimiser les réactions de rupture hétérogène à la paroi, un recouvrement de la paroi interne de la sonde est généralement effectué (NaOH/HNO₃ ou cire). Mais même dans ces conditions la fraction molaire mesurée X_m est différente de la fraction molaire réelle X de l'espèce présente dans la flamme.

Pour prendre en compte ces différentes réactions parasites on peut utiliser une méthode d'extrapolation à pression nulle qui consiste à faire varier la pression p dans la sonde de prélèvement. On peut constater (Figure 7) une évolution linéaire du $\ln X_m$ avec la pression p régnant dans la sonde, ce qui montre globalement la prépondérance des réactions d'ordre 1 de destruction des espèces à la paroi pendant la phase de prélèvement. La pente A_k de chacune de ces évolutions est spécifique de l'espèce K mesurée. Pour accéder à la fraction molaire X de l'espèce K dans la flamme, il suffit donc d'extrapoler à pression nulle la courbe $\ln X_m = f(p)$. Ainsi X est obtenue à partir de X_m grâce à la relation $X = X_m \exp(A_k \cdot p)$ ou P correspond à la pression régnant dans la sonde lors de la mesure de X_m .

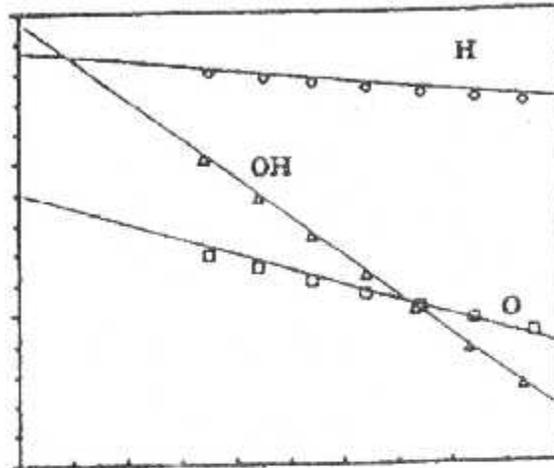


Figure 7: Evolution de $\ln X_{10}$ avec la pression p dans la sonde dans le cas de O, H et OH dans une flamme $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ ($\Phi = 1,016$ - $P = 80$ Torr).

1.6.5.2. Couplage d'un prélèvement par micro-sonde et analyse par CPG à la mesure d'espèces radicalaires par Fluorescence Induite par Laser (Figure 8) :

Il peut être très avantageux de coupler les techniques associées au prélèvement par sonde avec les méthodes optiques de diagnostic laser. L'utilisation de la fluorescence induite par laser permet une mesure non intrusive et sélective des espèces radicalaires telles que OH, CH, O et H. D'autre part en travaillant sur une même espèce mais à deux longueurs d'onde différentes, la technique permet d'accéder à la température du milieu réactionnel. Ainsi, en couplant cette approche optique à une technique plus classique de prélèvement par micro-sonde associé à une analyse de l'échantillon gazeux par Chromatographie en Phase Gazeuse, on peut d'établir les profils d'évolution de la fraction molaire d'un maximum d'espèces (stables et réactives) présentes dans la flamme.

Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées monodimensionnelles

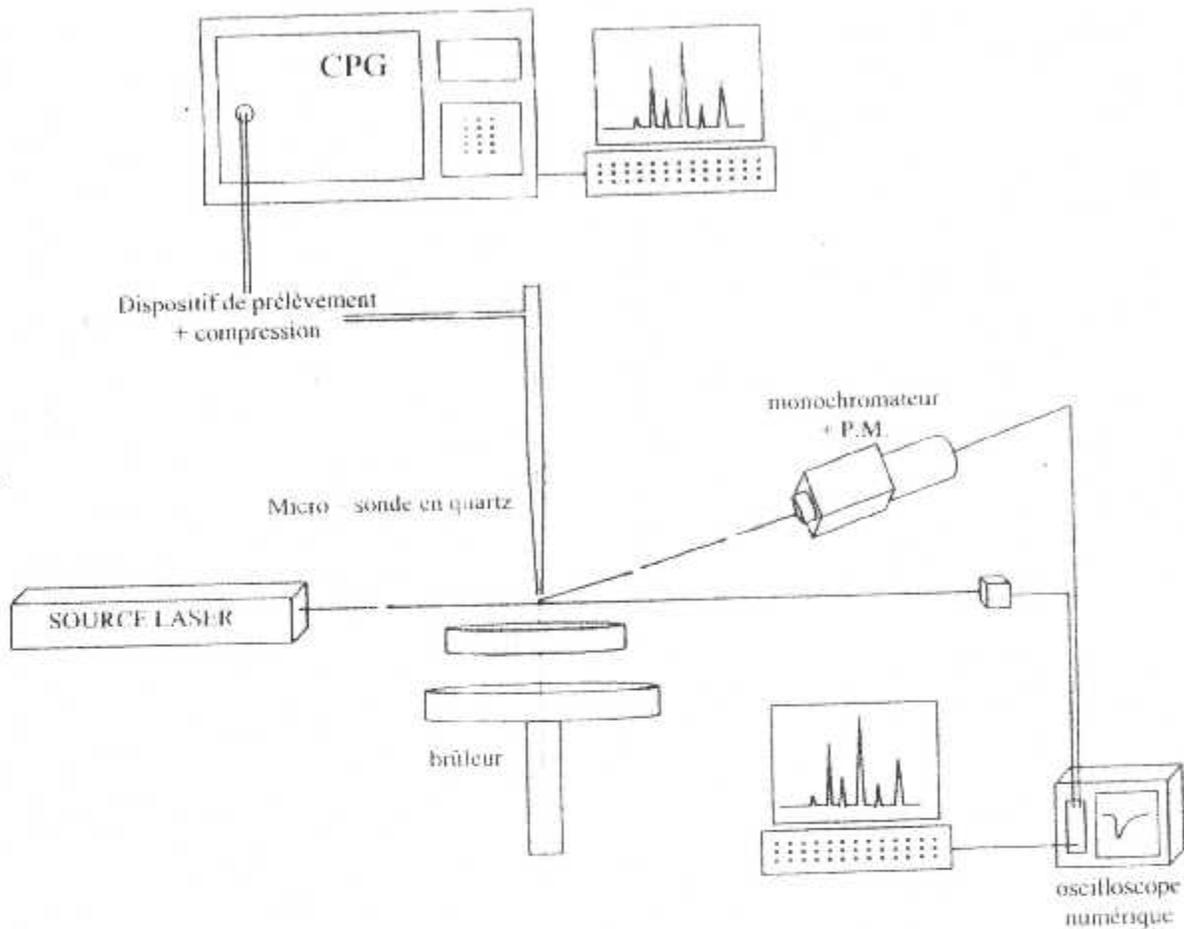


Figure 8: Schéma d'un dispositif expérimental d'analyse de flammes par couplage microsonde/CPG - fluorescence induite par laser

La principale difficulté de cette approche expérimentale consiste à faire coïncider le volume analysé par le faisceau laser à celui échantillonné par la micro-sonde. D'autre part, les mesures laser doivent être réalisées en présence de la micro-sonde. Cette étape est primordiale car il est nécessaire de réaliser les mesures laser dans les mêmes conditions que celles du prélèvement de façon de prendre en compte les perturbations induites par la sonde (perturbations thermiques et hydrodynamiques), il est généralement admis que le volume gazeux prélevé par une micro-sonde est positionné à une distance égale à deux fois le diamètre de

l'orifice de cette même micro-sonde. Il est cependant préférable de déterminer plus précisément la position réelle du volume échantillonné par la sonde de prélèvement. Pour cela il suffit de comparer les profils obtenus par les deux techniques pour une même espèce : en ajustant la position de l'axe laser par rapport à l'extrémité de la micro-sonde, on pourra obtenir un accord satisfaisant entre les deux profils.

Un second intérêt du couplage de ces deux techniques réside dans l'approche quantitative des mesures par FIL. En effet cette technique ne permet pas une mesure directe de la concentration absolue des espèces mesurées. Une possibilité consiste à calibrer les profils relatifs en utilisant une technique d'absorption (Spectroscopie d'Absorption, Cavity Ring Down Spectroscopy). La mesure quantitative par CPG des espèces majoritaires dans les mêmes conditions expérimentales permet d'appliquer la méthode du pseudo - équilibre dans les gaz brûlés entre les espèces O, H, OH, H₂, H₂O et O₂. En effet, dans les gaz brûlés, les réactions suivantes sont équilibrées :



Connaissant la température du milieu, il est possible de déterminer leurs constantes d'équilibre K_1 , K_2 , K_3 de chacun de ces réactions et donc de calculer les fractions molaires de O, H et OH à partir des relations suivantes (les fractions molaires de H₂O, H₂ et O₂ étant déterminées par CPG). :

**Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées
monodimensionnelles**

$$(X_{OH})_f = \sqrt{K_1 \times (X_O)_f \times (X_{H_2})_f} \left| (X_{H_2})_f = \frac{(X_O)_f \times (X_{OH})_f}{K_2 \times (X_{H_2O})_f} \right| (X_O)_f = K_3 \frac{(X_{O_2})_f \times (X_{H_2})_f}{(X_{H_2O})_f}$$

Le couplage des deux techniques permet donc d'aboutir à une étude de structure de flamme quasi-complète. A titre d'exemple, il est ainsi possible de faire l'acquisition d'une base de données expérimentale suffisamment précise pour mieux cerner certains aspects cinétiques comme la formation du monoxyde d'azote par interactions fragments hydrocarbonés / azote moléculaire (mécanisme du NO précoce). Dans ce type d'étude il est en effet nécessaire de bien suivre expérimentalement la cinétique d'oxydation du combustible (ici du méthane) si on veut appréhender la cinétique de formation de NO (Figure 10). La mesure des espèces stables par CPG permet d'obtenir des informations sur l'oxydation du méthane. La mesure des espèces réactives O, OH, H, CH ainsi que NO par fluorescence induite par laser donne des informations sur l'oxydation du méthane (O, H et OH) et sur la formation du NO (CH et NO).

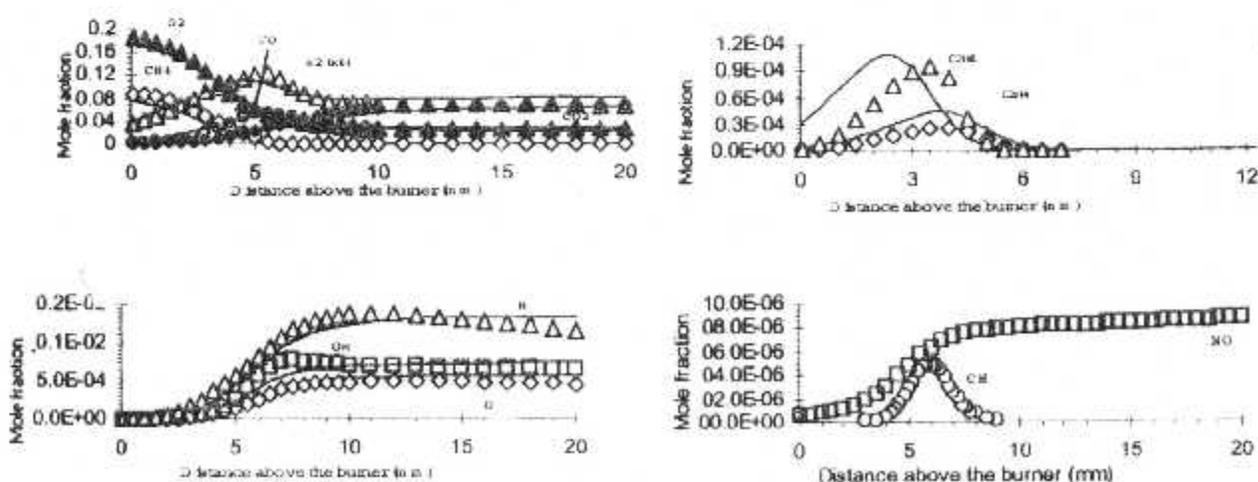
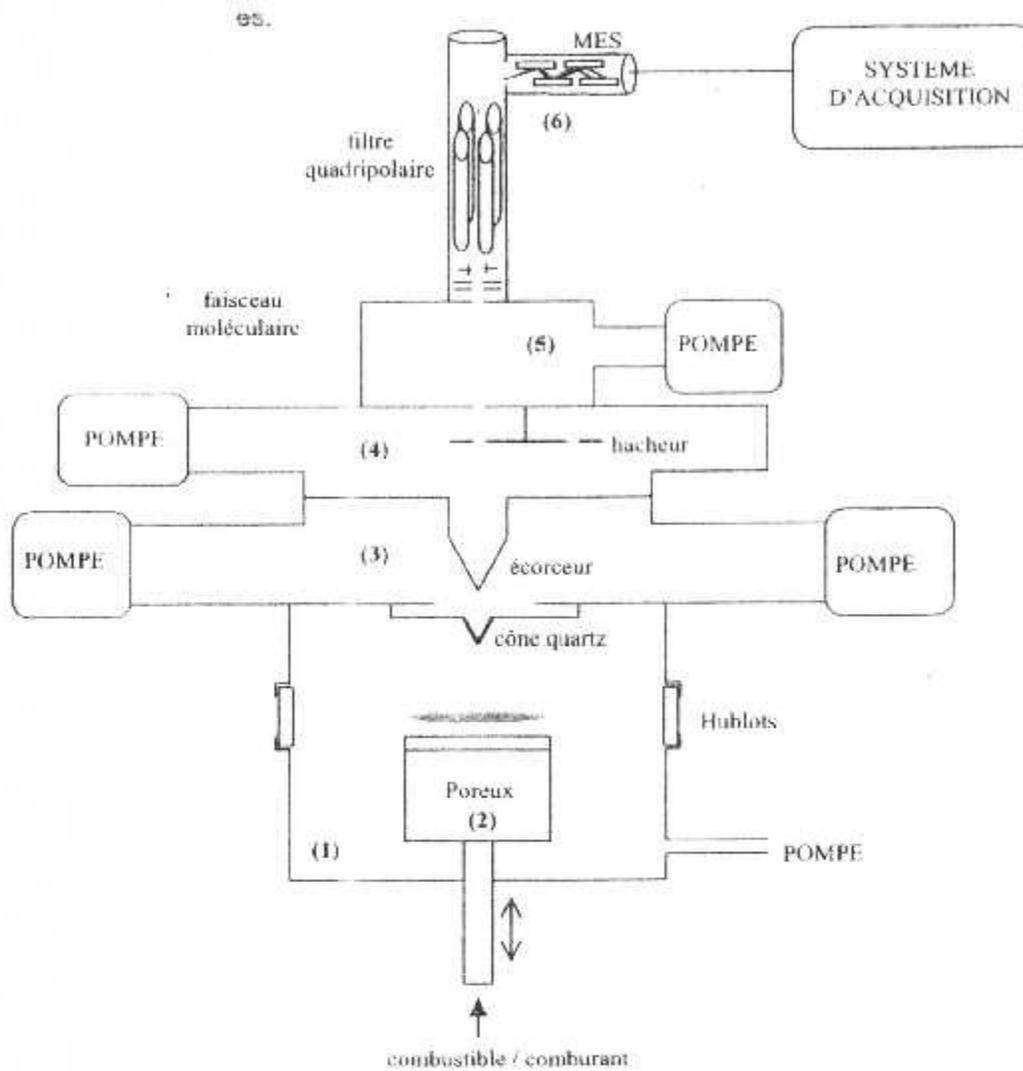


Figure 10: Structure d'une flamme de prémélange CH₄/O₂/N₂ étudiée par couplage CPG/FIL. Étude du mécanisme du prompt-NO (Gasnot et al., 1999).

1.6.5.3. Couplage du prélèvement par cône et faisceau moléculaire et de l'analyse par spectrométrie de masse(Figure 11) :

La formation d'un faisceau moléculaire permet d'assurer efficacement le blocage des réactions : elle est obtenue par une détente isentropique du gaz à analyser. Lors du passage du gaz à travers un orifice de petite dimension, cette détente transforme l'énergie interne (diminution de la température) en énergie cinétique (augmentation de la vitesse). La concentration au sein du faisceau moléculaire diminue également de manière importante. Ces deux facteurs, diminution de la température et de la concentration, contribuent à limiter les réactions chimiques.

Présentation générale des flammes plates, laminaires et prémélangées monodimensionnelles



- 1 : enceinte de combustion, 2 : brûleur mobile, 3 : 1^{ère} étage
 4 : 2^{ème} étage, 5 : source d'ionisation, 6 : spectromètre de masse

Figure 11: Schéma d'un dispositif expérimental d'analyse de flammes par couplage cône faisceau moléculaire - spectrométrie de masse (FM/SM).

Le prélèvement est effectué au moyen d'un cône car il faut pouvoir abaisser la pression à l'intérieur du cône jusque 10^{-4} torr environ. L'orifice de prélèvement a un diamètre de l'ordre de 0,1 mm. Le faisceau

moléculaire subit en général au moins une détente supplémentaire avant d'être analysé en temps réel par spectrométrie de masse (Figure 11).

Le principe de la mesure repose sur l'ionisation des espèces présentes dans le faisceau moléculaire. Les ions produits sont ensuite accélérés et déviés par un champ électrique et/ou magnétique. Les ions d'un rapport m/e donné (m : masse, e : charge de l'ion) sont focalisés sur un détecteur. L'ionisation des espèces peut se faire par impact électronique ou multiphotonique. La méthode la plus utilisée pour produire les ions repose sur un bombardement par des électrons accélérés par un champ électrique. Pour une espèce donnée, les électrons doivent avoir une énergie minimum, seuil égal au potentiel d'ionisation de l'espèce, pour produire son ionisation. Pour une concentration donnée d'une espèce, le signal mesuré est proportionnel à l'excès d'énergie au dessus de ce seuil. On accroît donc la sensibilité de l'analyse en opérant avec une énergie des électrons élevée. En réalité, l'énergie doit être limitée pour éviter une fragmentation des espèces qui conduit à la formation de deux ions de masse inférieure.

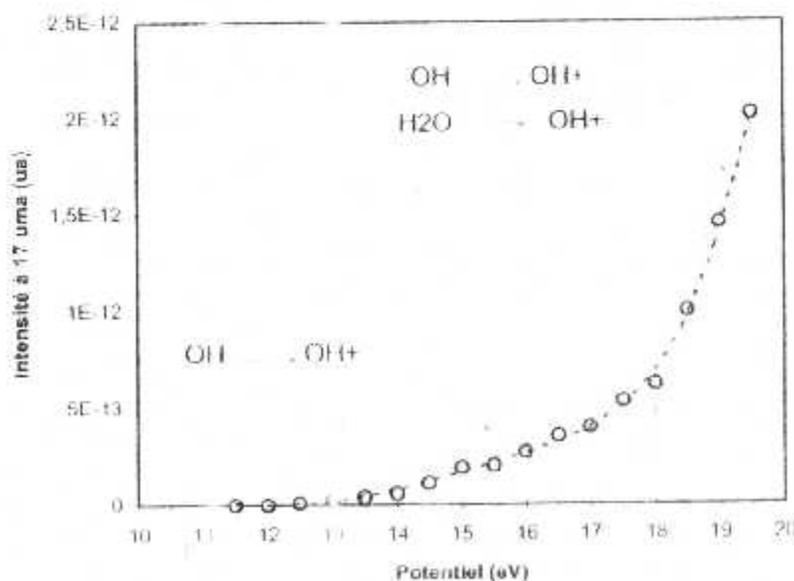


Figure 12 : Courbe de potentiel obtenue à 17 uma dans le cas d'une flamme $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$

A titre d'exemple, la figure 12 montre l'évolution du signal à la masse 17 obtenu dans les gaz brûlés d'une flamme basse pression méthane - air stoechiométrique, en fonction du potentiel V appliqué à la source d'ions. Entre 13 et 16,5 eV, on observe une variation linéaire

du signal due à l'ionisation du radical hydroxyle selon le schéma $\text{OH} + e^- \rightarrow \text{OH}^+ + 2e^-$. Au-delà de 18 eV, on observe une rupture de pente; dans ce cas, l'eau participe également au signal par fragmentation de H_2O pour former OH qui s'ionise ensuite selon le schéma $\text{H}_2\text{O} + e^- \rightarrow \text{OH} + \text{H} + e^- \rightarrow \text{OH}^+ + \text{H} + 2e^-$.

Ce problème se retrouve pour de nombreux radicaux hydrocarbonés lorsque cette technique d'analyse est utilisée pour étudier des flammes d'hydrocarbures lourds.

L'étalonnage des espèces est effectué à partir de mélanges étalons dans le cas des espèces stables, de l'équilibre partiel dans les gaz brûlés pour H, O, OH et en utilisant la méthode des sections efficaces d'ionisation dans les cas des radicaux tels que CH_3 , CHO, C_2H_5 , ...

La photoionisation laser résonante (REMPI) peut également être utilisée pour ioniser sélectivement les espèces présentes dans le faisceau moléculaire. Lorsque le rayonnement laser a une énergie suffisante, une molécule est susceptible d'absorber simultanément plusieurs photons. Lorsque l'énergie totale des photons absorbés est supérieure au potentiel d'ionisation de la molécule, l'espèce s'ionise. La détection des ions permet d'accéder à des informations concernant la spectroscopie moléculaire mais également à la mesure de la concentration de l'espèce ionisée dans un système réactif. L'intérêt de cette méthode est sa très grande sélectivité car elle permet de résoudre les problèmes d'interférences en masse

évoqués précédemment dans le cas de l'ionisation par bombardement électronique, la fréquence d'absorption étant caractéristique de l'espèce analysée.

Les techniques basées sur un prélèvement ont pour avantage essentiel de permettre l'analyse d'un grand nombre d'espèces de nature chimique différente, car les méthodes d'analyse sont peu spécifiques. Elles présentent deux inconvénients: elles perturbent le milieu à analyser principalement par refroidissement et les techniques d'analyse utilisées ont un temps de réponse qui ne permet pas d'effectuer des mesures instantanées.

I.7. MESURE DE LA TEMPERATURE :

Une flamme se caractérise par un gradient de température important au début de la zone réactionnelle, la température se stabilisant ensuite dans la région des gaz brûlés si les pertes de chaleur ne sont pas trop importantes (conditions proches de l'adiabaticité). La technique de mesure doit donc être capable de couvrir un domaine de température vaste et elle doit être suffisamment sensible pour reproduire les fortes variations observées.

Plusieurs méthodes spectroscopiques peuvent être utilisées (spectrométrie d'absorption, d'émission, Rayleigh, spectroscopie Raman spontanée, CARS, fluorescence induite par laser). Elles présentent l'avantage de ne pas perturber le milieu réactionnel. Elles permettent également des mesures instantanées. Par contre, certaines sont coûteuses, et l'interprétation du signal est parfois délicate. Ces méthodes ont été abordées dans les cours précédents.

La technique du thermocouple est actuellement la méthode intrusive la plus utilisée. Elle repose sur la mesure de la force électromotrice (f.e.m.) à la jonction entre deux métaux de conductivités

électriques différentes (par exemple jonction Platine - latine Rhodié).

Le calibrage de la f.e.m. en fonction de la température permet d'accéder aux températures de flamme. Il est possible de réaliser des thermocouples de faible dimension, si bien que les perturbations liées à leur introduction dans la flamme sont faibles. D'autre part, ceci permet également d'obtenir une meilleure résolution spatiale. La grande précision sur la mesure de la f.e.m. et la relative facilité de mise en oeuvre rendent cette technique tout à fait attrayante.

Les principales sources d'erreurs concernent:

- l'écoulement gazeux qui est susceptible d'entraîner des vibrations du thermocouple, ce qui limite parfois l'utilisation de thermocouples de très faibles dimensions.
- les pertes de chaleur par radiation et conduction. Les pertes par conduction sont évitées en fabriquant un thermocouple plan que l'on dispose perpendiculairement à l'écoulement gazeux. En ce qui concerne les pertes par radiation, la mesure de température peut être corrigée par la méthode de compensation électrique.
- les effets catalytiques à la surface du thermocouple qui s'accompagnent d'une augmentation locale de la température. Ces effets sont supprimés en recouvrant le thermocouple par un mélange d'oxydes réfractaires. D'autre part, l'utilisation d'un thermocouple est limitée aux flammes dont la température maximale est inférieure à la température de fusion du thermocouple.

I.8. QUELQUES APPLICATIONS DE L'ETUDE DE LA STRUCTURE DES FLAMMES :

I.8.1. Etude des mécanismes de formation et de consommation des oxydes d'azote :

- ❖ Analyse de flammes $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{N}_2$ par couplage microsonde -

I.8.4. Mise au point des mécanismes de formation des premiers cycles aromatiques :

❖ Analyse de flammes d'hydrogène et d'acétylène dopées par de l'aliène par couplage sonde - spectrométrie de masse - fluorescence induite par laser (Miller et al., 1996, Pauwels et al., 1995)

II-1 LA MODELISATION GENERALITES ET OBJECTIFS :

Le premier objectif de la modélisation est de reproduire des résultats expérimentaux à partir d'un mécanisme chimique postulé au préalable. Suivant que les données cinétiques à modéliser seront globales (chaleur de réaction, vitesse propagation de flamme, délais d'auto inflammation,...) ou détaillées (profils d'évolution des espèces moléculaires et radicalaires,...) le schéma du mécanisme cinétique utilisé sera plus ou moins détaillé. A ce titre, on distingue différents types de mécanismes chimiques, les mécanismes moléculaires (globaux et semi - globaux) et les mécanismes détaillés. La comparaison entre les résultats issus de la modélisation et les mesures expérimentales permet de tester le mécanisme postulé dans des conditions expérimentales bien définies. Lorsque l'accord modélisation / expérience est satisfaisant, le mécanisme est alors validé. Dans le cas contraire, les désaccords observés permettent d'optimiser et d'affiner les schémas cinétiques. L'objectif final reste la volonté de disposer d'un mécanisme chimique plus ou moins détaillé, validé dans une gamme de conditions expérimentales la plus large possible, et permettant de prévoir l'évolution d'un système chimique réactif spécifique.

L'évolution des performances des calculateurs et les progrès obtenus dans la description des mécanismes de combustion des hydrocarbures permettent aujourd'hui de résoudre des systèmes complexes d'équations cinétiques, correspondant à des schémas cinétiques détaillés comportant plusieurs centaines d'espèces et de réactions. Ces schémas s'appuient sur l'hypothèse que les combustibles complexes brûlent suivant des successions de mécanismes élémentaires relativement bien connus valables pour des combustibles plus simples. Pour résoudre les systèmes cinétiques, des codes de calcul performants sont aujourd'hui disponibles, tels CHEMKIN II (Kee et col., 1993).

Modélisation des flammes plates, laminaires, prémélangées, et mono - dimensionnelles

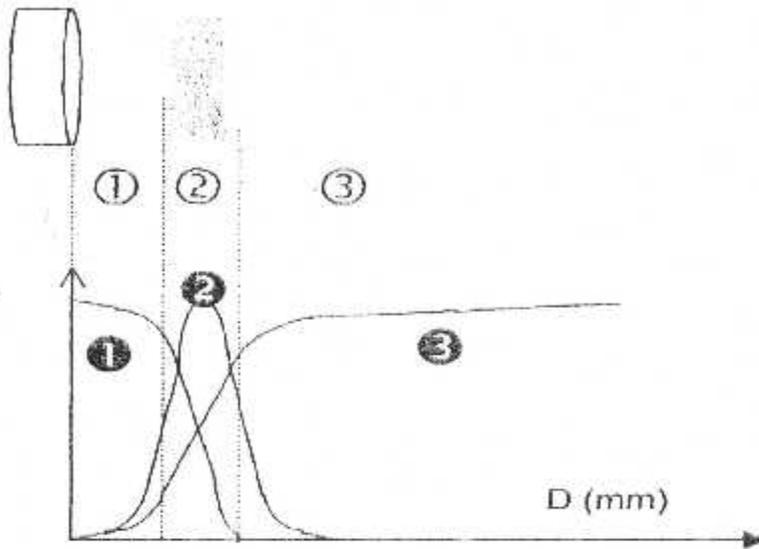


Figure 1: Structure schématique d'une flamme plate de prémélange.

- | | |
|---------------------|----------------------------|
| ○ 1 : gaz frais | ● 1 : réactif |
| 2 : front de flamme | 2 : espèces intermédiaires |
| 3 : gaz brûlés | 3 : produit de combustion |

La modélisation peut donc intervenir à différents niveaux : estimation d'une chaleur de réaction, calcul d'une vitesse de propagation de flamme, détermination des profils d'évolution des espèces présentes dans le milieu réactif, ... Dans le cas de l'étude de flammes plates prémélangées (Figure 1), l'objectif est d'estimer l'évolution de la concentration des espèces moléculaires et réactives dans les différentes zones du milieu réactionnel (gaz frais, zone réactionnelle et gaz brûlés).

II.2- MECANISMES GLOBAUX, SEMI-GLOBAUX ET DE TAILLES

II.2.1. Mécanismes globaux :

Ces schémas, d'une grande simplicité, mettent en jeu un nombre très limité d'espèces et de réactions. Ils sont appréciables uniquement dans les conditions pour lesquelles ils ont été élaborés. Généralement basés sur des hypothèses simplificatrices voire injustifiées, ils ne donnent

pas toujours des résultats précis. Parmi les schémas empiriques, les plus simples font appel à une seule équation mettant en jeu quatre espèces chimiques



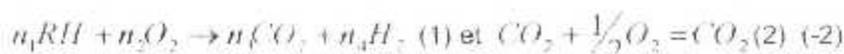
avec une vitesse de réaction de la forme :

$$A T^a \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) [RH]^a [O_2]^b$$

Selon les auteurs, cette réaction

peut être assimilée à une réaction élémentaire et dans ce cas $a = n_1$ et $b = n_2$, mais alors A et E sont fonction de la richesse, ou bien a et b sont différents de n_1 et n_2 et A et E sont des constantes. Ses domaines d'application sont limités à la prévision des vitesses de flammes et de certaines limites d'inflammabilité (pauvre et riche). Un tel modèle est incapable de prévoir l'évolution des espèces intermédiaires stables ainsi que des délais d'auto inflammation; de plus il conduit à une température finale adiabatique trop élevée.

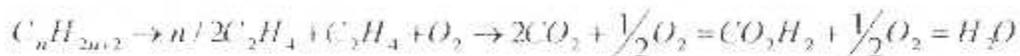
Pour prendre en compte l'évolution de l'intermédiaire CO , qui devient non négligeable pour des richesses élevées, on ajoute une étape réversible (2,-2) au mécanisme moléculaire à une étape ;



Modélisation des flammes plates, laminaires, prémélangées, et mono - dimensionnelles

Les améliorations concernent le calcul de CO à l'équilibre ainsi que la température adiabatique. Par contre ce type de modèle est incapable de calculer les délais d'auto inflammation. Pour tenir compte de l'évolution de l'hydrogène H₂, il est nécessaire d'utiliser un mécanisme à 3 équations, en ajoutant la réaction

$H_2 + 1/2O_2 = H_2O$ au cours de la combustion des alcanes, on passe généralement par la formation d'intermédiaires stables et dans ce cas on peut utiliser un schéma à quatre 4 réactions :



, Les lois de vitesse sont un peu plus compliquées et font intervenir généralement trois composés.

Dans ce cas les délais d'auto inflammation des différents alcanes sont également prédits correctement, mais par contre ce schéma conduit à une médiocre représentation des profils de concentrations dans les flammes.

II.2.2. Mécanismes semi-globaux :

Légèrement différente, cette approche consiste à distinguer deux étapes dans la réaction, une première où le combustible est oxydé en CO et H₂ et une seconde où on fabrique CO₂ et H₂O. C'est ainsi que certains auteurs proposent un modèle où une première réaction $C_nH_m + n/2 O_2 = n CO + m/2 H_2$ est suivie d'un schéma cinétique détaillé correspondant à l'oxydation des systèmes H₂/O₂ et CO/CO₂ (environ 30 réactions élémentaires réversibles). Enfin, certains mécanismes prennent également en compte la chimie d'oxydation des hydrocarbures intermédiaires, tels C₂H₄ par exemple.

II.2.3. Mécanismes chimiques détaillés :

Un mécanisme détaillé peut être écrit en considérant toutes les espèces intermédiaires possibles et toutes les réactions possibles entre ces espèces. Cette démarche n'est pas envisageable car le nombre de réactions deviendrait rapidement énorme, et ces réactions ne seraient pas nécessairement toujours permises thermodynamiquement.

Les espèces doivent donc être sélectionnées d'une part en prenant en compte au moins toutes les espèces dosées expérimentalement et d'autre part à partir de considérations thermodynamiques. Il faut aussi savoir quelle est la précision recherchée, validation du mécanisme sur les espèces stables ou sur les espèces stables et réactives, la complexité du mécanisme devenant rapidement croissante avec la précision.

Les réactions impliquées dans les schémas réactionnels détaillés des mécanismes de basse et de haute température sont généralement prises en compte. Leurs paramètres cinétiques sont issus de travaux antérieurs effectués sur le même système réactionnel, mesures directes ou indirectes de constantes de vitesse de réactions élémentaires publiées dans la littérature (compilations de Baulch, NBS, NIST), de calculs ou d'estimations théoriques. A l'heure actuelle un grand nombre de constantes de vitesse n'ont pas été mesurées dans le domaine de température des flammes. De plus des incertitudes, des contradictions et des incohérences existent entre certaines données existantes.

Certains schémas cinétiques d'oxydation dans les flammes ainsi qu'un grand nombre de constantes de vitesse sont encore mal connus ou inconnus, par exemple dans le cas des aromatiques et des composés organiques volatils. La plupart des constantes de vitesse connues sont données avec une incertitude comprise entre 10 et 100.

Certaines constantes de vitesse, de réactions de recombinaison, d'addition ou de dissociation par exemple, peuvent également être calculées (CHEMFACT).

Un grand nombre de réactions peuvent se faire en sens inverse à certains stades de l'évolution du système étudié (vers l'équilibre par exemple). Pour calculer une constante de vitesse inverse, il est donc nécessaire de connaître la constante de vitesse directe, la température ainsi que les données thermodynamiques des espèces (pour une espèce k : Cp_k , S_k , h_k) mises en jeu dans la réaction. Ces données se trouvent dans des tables présentées sous différents formats (JANAF; NBS; Kee et col., 1987, 1989) ou elles peuvent être calculées à partir de programmes (THERGAS, THERM). Dans le cas des flammes, les données nécessaires à l'évaluation des coefficients de transport ($\eta_k, \lambda_k, D_{k,j}$) sont les paramètres, issus de la théorie cinétique des gaz, qui définissent la géométrie, la masse et les caractéristiques de collision des molécules. Elles sont généralement extraites de bases de données (Kee et col., 1983, 1986) ou calculées.

II 3-PROCEDURE SCHEMATIQUE DE MISE AU POINT D'UN MECANISME CHIMIQUE DETAILLE POUR LA MODELISATION DES FLAMMES :

Les objectifs de la modélisation de la cinétique chimique détaillée sont la mise au point d'un mécanisme chimique et sa validation dans des conditions les plus larges possibles. Pour parvenir à ces objectifs, il faut :

- ⇒ 1) Choisir un système réactif (flamme) le moins compliqué possible

Flamme monodimensionnelle stationnaire prémélangée

Modélisation des flammes plates, laminaires, prémélangées, et mono - dimensionnelles

2) Faire l'analyse expérimental préliminaire de la flamme

⇒ *Obtention de données cinétiques (plus ou moins) détaillées dans des conditions expérimentales variées (richesse, pression, dilution, ...)*

⇒ *Profils de température et d'évolution des espèces mesurées*

3) Disposer d'un code de modélisation de flammes, associé à des bases de données cinétiques, thermodynamiques et de transport

4) Utiliser un solveur d'équations différentielles puissant

⇒ *Maillage adaptatif*

5) Comparer les résultats expérimentaux avec les résultats modélisés à

i) partir du mécanisme chimique postulé à priori

7) Analyser les résultats

⇒ *Calcul des vitesses globales d'évolution des espèces*

⇒ *Calcul des vitesses des réactions élémentaires impliquées dans le mécanisme et étude de leur influence sur la formation et/ou la disparition d'une espèce*

⇒ *Analyses de sensibilité*

ii) Mise au point du mécanisme (postulé en 3)

9) Analyse des chemins réactionnels principaux

II.4. Modélisation des flammes plates, laminaires, prémélangées, et mono - dimensionnelles :

On ne présente dans cette partie que le principe général de la modélisation de ce type de flamme. Une approche plus détaillée de la méthode a déjà été présentée.

II.4.1. Equations de conservation :

Les équations de bilan, qui décrivent la propagation d'une flamme de prémélange, unidimensionnelle, laminaire et plate, sont écrites sous forme conservative pour la masse totale, la fraction massique de chaque espèce chimique et l'enthalpie. Le traitement numérique d'une flamme se fait donc en résolvant le système indépendant du temps donné par les équations de conservation suivantes :

Conservation de la masse

$$M = \rho v A$$

Conservation des espèces

$$M \frac{dY_k}{dz} + \frac{d}{dz}(\rho A Y_k V_k) - M_k R_k = 0$$

Conservation de l'énergie

$$M \frac{dT}{dz} + \frac{A}{C_p} \sum C_{p_k} \rho V_k Y_k \frac{dT}{dz} - \frac{A}{C_p} \frac{d}{dz} \left(\lambda \frac{dT}{dz} \right) + \frac{A}{C_p} \sum h_k M_k R_k = 0$$

Equation d'état

$$\rho = \frac{pM}{RT}$$

Dans ces équations M correspond au flux massique (indépendant de la coordonnée spatiale z), $\rho(z)$ est la masse volumique de l'écoulement gazeux, $v(z)$ est la vitesse de l'écoulement gazeux, $A(z)$ est le coefficient d'expansion latérale de la flamme.

Pour chaque espèce k , Y_k est sa fraction massique, V_k sa vitesse de diffusion, M_k sa masse molaire, R_k sa vitesse globale d'évolution due aux réactions chimiques, C_{p_k} sa capacité calorifique à pression constante et h_k

son enthalpie spécifique.

Pour le mélange, C_p est la capacité calorifique à pression constante, ρ est la conductivité thermique et M représente la masse molaire moyenne. T et P sont respectivement la température et la pression.

La vitesse de diffusion V_k d'une espèce k est définie par ses trois composantes ω_k, W_k et V_c telles que : $V_k = \omega_k + W_k + V_c$

est la vitesse de diffusion par gradient de concentration donnée par

l'approximation de Curtiss et Hirschfelder (1949): $\omega_k = \frac{D_k}{X_k} \frac{dX_k}{dz}$,

coefficient de diffusion global); la vitesse de diffusion thermique W_k est calculée uniquement pour les espèces légères telles que H et H₂ :

$W_k = \frac{D_k}{X_k} \frac{k_k^T}{T} \frac{dT}{dz}$; le terme de vitesse de correction V_c , indépendant de

l'espèce mais fonction de la position z , est introduit pour vérifier la conservation du flux global de diffusion et il est calculé en utilisant la

relation
$$V_c = - \sum_{k=1}^k Y_k (\omega_k + W_k)$$

Le programme tient compte de la conservation de l'énergie, ce qui conduit au calcul simultané des profils de température et de fraction molaire des espèces mises en jeu dans le mécanisme. Un des inconvénients lié aux flammes stabilisées sur brûleur est l'estimation, dans l'équation de conservation de l'énergie, des pertes de chaleur au brûleur. Or la température joue un rôle déterminant dans la chimie des flammes.

Pour cette raison, le profil de température expérimental qui tient

compte des pertes thermiques au brûleur est généralement imposé. Dans ces conditions l'équation de conservation de l'énergie n'est pas résolue ce qui réduit de façon importante le temps de calcul.

II.4.2 Méthode de résolution numérique :

Pour résoudre le système constitué par les équations de conservation consiste d'abord à faire des approximations de différences finies ce qui permet de réduire ce problème de valeurs aux limites à un système d'équations algébriques non linéaires. Les approximations initiales se font habituellement sur un maillage grossier régulier comportant généralement six à dix noeuds.

Lorsqu'on a obtenu une solution sur ce maillage de nouveaux noeuds sont insérés dans les régions de forts gradients. On estime ensuite la nouvelle solution sur ce maillage plus fin en interpolant à partir du résultat précédent. Cette procédure continue tant que les paramètres de convergence fixés par l'utilisateur ne sont pas atteints. Le système d'équations algébriques est résolu par une méthode de Newton amortie (Grcar et col., 1986). Si l'algorithme ne converge pas dans ces conditions, les équations de conservation sont intégrées dans le temps afin d'obtenir des valeurs initiales plus proches de la solution ce qui rend la convergence plus facile. Comme le maillage s'affine de plus en plus, l'estimation interpolée à partir du maillage précédent se rapproche de plus en plus du domaine de convergence de la méthode de Newton.

II.4.3 Description de la méthode de NEWTON amortie :

L'analyse numérique nous permettra d'évaluer numériquement les racines d'un système non linéaire de N équations. Notre problème consiste à trouver le vecteur $\vec{X} = [X_1, X_2, X_3, \dots, X_n]^T$ vérifiant les N équations non

linéaire suivantes :

$$\begin{cases} F1(x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \\ F2(x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \\ \vdots \\ Fn(x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \end{cases}$$

Le noyau de base de l'analyse numérique de l'optimisation est la formule de Taylor sur les accroissements finis. Donc les N premières

dérivées de $F(x_n)$ doivent exister et ils sont continues sur l'intervalle $[X, X_{\text{crit}}]$

Condition d'arrêt

A cause des problèmes de lenteur de convergence, ou de divergence voire même de stationnarité, nous utiliserons une ou les conditions d'arrêts suivantes :

Si $f(x_i) - f(x_{i+1}) < \epsilon$: arrêt dès que la fonction a diminué de moins de ϵ

Efficacité de l'algorithme

Hormis le fait que l'algorithme puisse trouver une solution en peu d'itération et également qu'il ne soit pas tributaire du nombre d'itérations, un algorithme est robuste lorsqu'il a une bonne convergence asymptotique, c'est-à-dire lorsque le vecteur estimé \tilde{X} est proche du vecteur X à ϵ près, que nous écrivons également sous la forme suivante :

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow \infty} \frac{X_{\varepsilon+1} - X_{\varepsilon}}{X_{\varepsilon} - X} = \varepsilon < 1$$

Soit donc notre système :

$$\begin{cases} F_1(x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \\ F_2(x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \\ \vdots \\ \vdots \\ F_n(x_1, x_2, \dots, x_n) = 0 \end{cases}$$

Soit $X^0 = [X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0]$ le vecteur d'approximation initiale de la solution de notre système. le rôle de la méthode de newton est de

déterminer une correction $[\partial X_1, \partial X_2, \dots, \partial X_n]$ au vecteur

$[X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0]$ de tel sorte que :

$$\begin{cases} f_1(X_1^0 + \partial X_1, X_2^0 + \partial X_2, X_3^0 + \dots + \partial X_n) = 0 \\ f_2(X_1^0 + \partial X_1, X_2^0 + \partial X_2, X_3^0 + \dots + \partial X_n) = 0 \\ \vdots \\ \vdots \\ f_n(X_1^0 + \partial X_1, X_2^0 + \partial X_2, X_3^0 + \dots + \partial X_n) = 0 \end{cases}$$

Pour estimer $[\partial X_1, \partial X_2, \dots, \partial X_n]$ nous faisons un développement de Taylor d'ordre 1 en quatre variables pour chacune des fonctions :

$$\left\{ \begin{aligned} f_1(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) + \frac{\partial f_1}{\partial X_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_1 + \frac{\partial f_1}{\partial X_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_2 + \dots + \frac{\partial f_1}{\partial X_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_n &= 0 \\ f_2(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) + \frac{\partial f_2}{\partial X_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_1 + \frac{\partial f_2}{\partial X_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_2 + \dots + \frac{\partial f_2}{\partial X_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_n &= 0 \\ \dots & \\ f_n(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) + \frac{\partial f_n}{\partial X_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_1 + \frac{\partial f_n}{\partial X_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_2 + \dots + \frac{\partial f_n}{\partial X_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_n &= 0 \end{aligned} \right.$$

Pour déterminer $|\hat{\alpha}_1, \hat{\alpha}_2, \dots, \hat{\alpha}_n|$, nous résolvons le système linéaire suivant :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial f_1}{\partial X_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_1 + \frac{\partial f_1}{\partial X_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_2 + \dots + \frac{\partial f_1}{\partial X_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_n &= f_1(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \\ \frac{\partial f_2}{\partial X_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_1 + \frac{\partial f_2}{\partial X_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_2 + \dots + \frac{\partial f_2}{\partial X_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_n &= f_2(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \\ \dots & \\ \frac{\partial f_n}{\partial X_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_1 + \frac{\partial f_n}{\partial X_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_2 + \dots + \frac{\partial f_n}{\partial X_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \hat{\alpha}_n &= f_n(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \end{aligned} \right.$$

Ou encore sous forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} \frac{\partial \mathcal{F}_1}{\partial \alpha_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) & \frac{\partial \mathcal{F}_1}{\partial \alpha_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) & \dots & \frac{\partial \mathcal{F}_1}{\partial \alpha_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \\ \frac{\partial \mathcal{F}_2}{\partial \alpha_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) & \frac{\partial \mathcal{F}_2}{\partial \alpha_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) & \dots & \frac{\partial \mathcal{F}_2}{\partial \alpha_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \frac{\partial \mathcal{F}_n}{\partial \alpha_1}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) & \frac{\partial \mathcal{F}_n}{\partial \alpha_2}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) & \dots & \frac{\partial \mathcal{F}_n}{\partial \alpha_n}(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \end{bmatrix}$$

$$* \begin{bmatrix} \partial X_1 \\ \partial X_2 \\ \cdot \\ \cdot \\ \partial X_n \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} f_1(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \\ f_2(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \\ \cdot \\ \cdot \\ f_n(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \end{bmatrix}$$

Ce système linéaire s'écrit également sous une forme plus compacte :

$$J(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0) \partial X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0 = -f(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0)$$

Modélisation des flammes plates, laminaires, prémélangées, et mono - dimensionnelles

ou $J(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0)$ désigne la matrice jacobéenne évalué au vecteur initial $(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0)$, ou $\partial(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0)$ est le vecteur des corrections relatives à chaque variable et ou $f(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0)$ est le vecteur résidu évalué en $(X_1^0, X_2^0, \dots, X_n^0)$.

Nous posons ensuite :

$$X_1^1 = X_1^0 + \partial X_1^0$$

$$X_2^1 = X_2^0 + \partial X_2^0$$

⋮

⋮

$$X_n^1 = X_n^0 + \partial X_n^0$$

Qui est la première approximation de la solution de notre système non linéaire. Par la suite les nouvelles valeurs s'écrivent ainsi :

$$X_1^{i+1} = X_1^i + \partial X_1^i$$

$$X_2^{i+1} = X_2^i + \partial X_2^i$$

⋮

⋮

$$X_n^{i+1} = X_n^i + \partial X_n^i$$

II.4.4 Méthode de newton amortie :

Nous avons pu constater dans les méthodes précédentes que la condition $\|F(X_{i+1})\| < \|F(X_i)\|$ n'était pas souvent réalisée. Force de constater l'échec des méthodes qui précédentes pour notre système, nous avons essayé cette méthode qui permet de se déplacer dans la direction ∂x_i d'un pas λ_i ou $\lambda_i < 1$ est choisi tel qu'il satisfasse la condition

$$\|F(X_{k+1})\| < \|F(X_k)\|$$

L'algorithme de newton devient alors :

$$X_{k+1} = X_k + \lambda_k \cdot \partial X_k \text{ avec } \mathcal{J}(X_k) \cdot \partial X_k \equiv -F(X_k)$$

III -1 Résolution du système d'équations :

Equations de conservation

Conservation de la masse :

$$M = \rho v A \dots\dots\dots (I)$$

Conservation des espèces :

$$M \frac{\partial y_k}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} (\rho A v_k y_k) - A M_k R_k = 0 \dots\dots\dots (II)$$

Conservation de l'énergie

$$M \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{A}{C_p} \sum C_{p_k} \rho v_k y_k \frac{\partial T}{\partial z} - \frac{A}{C_p} \frac{\partial}{\partial z} (\lambda \frac{\partial T}{\partial z}) + \frac{A}{C_p} \sum h_k M_k R_k = 0 \dots\dots\dots (III)$$

Equation d'état

$$\rho = \frac{P \bar{M}}{R T} \dots\dots\dots (IV)$$

Calcul de V_c

$$V_c = \omega_k + W_k + V_c$$

$$\omega_k = \frac{D_k}{y_k} \frac{\partial y_k}{\partial z}$$

$$W_k = \frac{D_k}{y_k} \frac{K_k^T}{T} \frac{\partial T}{\partial z}$$

$$V_c = - \sum_{k=1}^K y_k (\omega_k + W_k)$$

Donc

$$V_k = \frac{D_k}{y_k} \frac{\partial y_k}{\partial z} + \frac{D_k}{y_k} \frac{K_k^T}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - \sum_{k=1}^K (D_k \frac{\partial y_k}{\partial z} + D_k \frac{K_k^T}{T} \frac{\partial T}{\partial z}) \dots\dots\dots (V)$$

Dans le cas on il y a trois espèces : K=3

L'équation de la conservation des espèces sera comme suit :

$$M \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{M}{v} y_1 v_1 \right) - A M_1 R_1 = 0 \dots\dots\dots (I)$$

$$M_1 \frac{\partial y_2}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{M}{v} y_2 v_2 \right) - A M_2 R_2 = 0 \dots\dots\dots(2)$$

$$M \frac{\partial y_3}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{M}{v} y_3 v_3 \right) - A M_3 R_3 = 0 \dots\dots\dots(3)$$

$$\rho A = \frac{M}{v}$$

$$A M_k R_k = S_{1,k}$$

$$(1) \Rightarrow M \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{M}{v} v_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{M}{v} y_1 \frac{\partial v_1}{\partial z} + S_{1,1} = 0$$

$$M \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z}$$

$$\left[\left(\frac{D_1}{v_1} \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{D_1 K_1}{y_1 T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} - D_1 \frac{K_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} - D_2 \frac{K_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} - D_3 \frac{K_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right) \right]$$

$$+ \frac{M}{v} y_1 \left[\frac{D_1}{y_1} \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} - \frac{D_1}{y_1^2} \left(\frac{\partial y_1}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_1 K_1}{y_1^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_1}{\partial z} - \frac{D_1 K_1}{y_1 T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 + \frac{D_1 K_1}{y_1 T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} y_1 \left[\begin{array}{l} -D_1 \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} + D_1 \frac{K_1}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_1 K_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_2 \frac{\partial^2 y_2}{\partial z^2} + D_2 \frac{K_2}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_2 K_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_3 \frac{\partial^2 y_3}{\partial z^2} + D_3 \frac{K_3}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - \\ \frac{D_3 K_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \end{array} \right]$$

$$+ S_{1,1} = 0 \dots\dots\dots(4)$$

$$\begin{aligned}
 (4) \Leftrightarrow & M \frac{\partial y_1}{\partial z} + \\
 & + \frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z} \left[\frac{D_1}{y_1} \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{D_1 k_1}{y_1 T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] + \frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z} \left[-D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} - D_1 \frac{k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z} \left[-D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} - D_2 \frac{k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] + \frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z} \left[-D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} - D_3 \frac{k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_1 \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} - \frac{D_1}{y_1} \left(\frac{\partial y_1}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_1 k_1}{y_1 T} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_1}{\partial z} - \frac{D_1 k_1}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 + \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_1 \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} y_1 + D_1 \frac{k_1}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 - D_1 k_1 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_2 \frac{\partial^2 y_2}{\partial z^2} y_1 + D_2 \frac{k_2}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 - D_2 k_2 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_3 \frac{\partial^2 y_3}{\partial z^2} y_1 + D_3 \frac{k_3}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 - D_3 k_3 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 \right] + S_{1,1} = 0 \dots \dots (5)
 \end{aligned}$$

On dérive (5) par rapport à δy_1^1 on obtient :

$$\begin{aligned}
 & \frac{M}{v} \left[\frac{\partial y_1}{\partial z} \left(-\frac{D_1}{y_1^2} \right) - \frac{D_1 k_1}{y_1^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{M}{v} \left[-D_1 \frac{2}{h^2} + \frac{D_1}{y_1^2} \left(\frac{\partial y_1}{\partial z} \right)^2 + \frac{D_1 k_1}{y_1^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_1}{\partial z} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_1 \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} + D_1 \frac{k_1}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_1 k_1 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_2 \frac{\partial^2 y_2}{\partial z^2} + D_2 \frac{k_2}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_2 k_2 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_3 \frac{\partial^2 y_3}{\partial z^2} + D_3 \frac{k_3}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_3 k_3 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] = J_{11}
 \end{aligned}$$

Et par rapport à δy_2^1 :

$$+ \frac{M}{v} \left[+D_2 \frac{2}{h^2} y_1 \right] = J_{12}$$

Et par rapport à δy_3^1 :

$$+\frac{M}{v} \left[+D_3 \frac{2}{h^2} y_1 \right] = J_{13}$$

Et par rapport à δT^1 :

$$\frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z} \left[-\frac{D_1 k_1}{y_1 T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{D_1 k_1}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + D_2 \frac{k_2}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + D_3 \frac{k_3}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} \right]$$

$$+\frac{M}{v} \left[+\frac{D_1 k_1}{y_1 T^2} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{2D_1 k_1}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_1 k_1}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - \frac{2D_1 k_1}{h^2 T} \right]$$

$$+\frac{M}{v} \left[-\frac{2D_2 k_2}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_2 k_2}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_2 k_2}{h^2 T} y_1 \right]$$

$$+\frac{M}{v} \left[-\frac{2D_3 k_3}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_3 k_3}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_3 k_3}{h^2 T} y_1 \right]$$

$$+\frac{M}{v} \left[-\frac{2D_3 k_3}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_3 k_3}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_3 k_3}{h^2 T} y_1 \right] = J_{14}$$

En passant par les mêmes étapes on trouvera : J_{21} , J_{22} , J_{23} , J_{24} , J_{31} , J_{32} , J_{33} , J_{34} .

$$J_{21} = +\frac{M}{v} \left[+D_1 \frac{2}{h^2} y_2 \right]$$

$$J_{22} = \frac{M}{v} \left[\frac{\partial y_2}{\partial z} \left(-\frac{D_2}{y_2^2} \right) - \frac{D_2 k_2}{y_2^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \frac{\partial y_2}{\partial z} + \frac{M}{v} \left[-D_2 \frac{2}{h^2} + \frac{D_2}{y_2^2} \left(\frac{\partial y_2}{\partial z} \right)^2 + \frac{D_2 k_2}{y_2^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_2}{\partial z} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[-D_1 \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} + D_1 \frac{k_1}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_1 k_1 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[-D_2 \frac{\partial^2 y_2}{\partial z^2} + D_2 \frac{k_2}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_2 k_2 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[-D_3 \frac{\partial^2 y_3}{\partial z^2} + D_3 \frac{k_3}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_3 k_3 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[+D_3 \frac{2}{h^2} y_2 \right] = J_{23}$$

$$J_{24} = \frac{M}{v} \frac{\partial y_2}{\partial z} \left[-\frac{D_2 k_2}{y_2 T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{D_2 k_2}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + D_1 \frac{k_1}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + D_3 \frac{k_3}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[+\frac{D_2 k_2}{y_2 T^2} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_2}{\partial z} + \frac{2D_2 k_2}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_2 k_2}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - \frac{2D_2 k_2}{h^2 T} \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[-\frac{2D_1 k_1}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_1 k_1}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_1 k_1}{h^2 T} y_1 \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[-\frac{2D_2 k_2}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_2 k_2}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_2 k_2}{h^2 T} y_1 \right]$$

$$+ \frac{M}{v} \left[-\frac{2D_3 k_3}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_3 k_3}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_3 k_3}{h^2 T} y_1 \right]$$

$$J_{31} = + \frac{M}{v} \left[+D_1 \frac{2}{h^2} y_3 \right]$$

$$J_{32} = + \frac{M}{v} \left[+D_2 \frac{2}{h^2} y_3 \right]$$

$$J_{33} = \frac{M}{v} \left[\frac{\partial y_3}{\partial z} \left(-\frac{D_3}{y_3^2} \right) - \frac{D_3 k_3}{y_3^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \frac{\partial y_3}{\partial z} + \frac{M}{v} \left[-D_3 \frac{2}{h^2} + \frac{D_3}{y_3^2} \left(\frac{\partial y_3}{\partial z} \right)^2 + \frac{D_3 k_3}{y_3^2 T} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_3}{\partial z} \right]$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{M}{v} \left[-D_1 \frac{\partial^2 y_1}{\partial z^2} + D_1 \frac{k_1}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_1 k_1 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_2 \frac{\partial^2 y_2}{\partial z^2} + D_2 \frac{k_2}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_2 k_2 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-D_3 \frac{\partial^2 y_3}{\partial z^2} + D_3 \frac{k_3}{T^2} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - D_3 k_3 \frac{1}{T} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 J_{34} = & \frac{M}{v} \frac{\partial y_1}{\partial z} \left[-\frac{D_1 k_1}{y_1 T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{D_1 k_1}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + D_1 \frac{k_1}{T^2} \frac{\partial T}{\partial z} + D_2 \frac{k_2}{T_2} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[+\frac{D_3 k_3}{y_3 T^2} \frac{\partial T}{\partial z} \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{2D_3 k_3}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 - \frac{D_3 k_3}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} - \frac{2D_3 k_3}{h^2 T} \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-\frac{2D_1 k_1}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_1 k_1}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_1 k_1}{h^2 T} y_1 \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-\frac{2D_2 k_2}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_2 k_2}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_2 k_2}{h^2 T} y_1 \right] \\
 & + \frac{M}{v} \left[-\frac{2D_3 k_3}{T^3} \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)^2 y_1 + \frac{D_3 k_3}{T^2} \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} y_1 - \frac{2D_3 k_3}{h^2 T} y_1 \right]
 \end{aligned}$$

On a (III) \Rightarrow

$$\left(\frac{M Cp}{A} + \rho \sum_{k=1}^3 Cp_k v_k y_k \right) \frac{\partial T}{\partial z} - \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \sum_{k=1}^3 h_k M_k R = 0$$

Si on injecte (I) et (IV) on aura :

$$\left(\frac{\rho \bar{M}}{RT} V Cp + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \sum_{k=1}^3 Cp_k v_k y_k \right) \frac{\partial T}{\partial z} - \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + S_{1k} = 0$$

$$\left(\frac{\rho \bar{M}}{RT} V Cp + \frac{\rho \bar{M}}{RT} (Cp_1 Y_1 + Cp_2 Y_2 + Cp_3 Y_3) \right) \frac{\partial T}{\partial z} - \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + S_{1k} = 0$$

$$\begin{aligned}
& \left\{ \frac{\rho \bar{M}}{RT} V C_p + \frac{\rho \bar{M}}{RT} C_{p1} \left(D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} + \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_1 - D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} y_1 \right) \right. \\
& + \frac{\rho \bar{M}}{RT} C_{p1} \left(-D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} y_1 - \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_1 - \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_1 - D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} y_1 \right) \\
& + \frac{\rho \bar{M}}{RT} C_{p2} \left(D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} - D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} y_2 + \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_2 \right) \\
& + \frac{\rho \bar{M}}{RT} C_{p2} \left(-D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} y_2 - D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} y_2 + \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_2 - \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_2 \right) \\
& + \frac{\rho \bar{M}}{RT} C_{p3} \left(D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} - D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} y_3 + \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_3 \right) \\
& \left. + \frac{\rho \bar{M}}{RT} C_{p3} \left(-D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} y_3 - D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} y_3 + \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_3 - \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} y_3 \right) \right\} \frac{\partial T}{\partial z} - \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + S_{1A} = 0
\end{aligned}$$

On dérive par ∂y_1^1 :

$$\frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p1} \left(-D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} - \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} - \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} - \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right) \right) = J_{41}$$

On dérive par ∂y_2^1 :

$$\frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p2} \left(-D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} - \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} - \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} - \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right) \right) = J_{42}$$

On dérive par ∂y_3^1 :

$$\frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p3} \left(-D_3 \frac{\partial y_3}{\partial z} - \frac{D_3 k_3}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_1 \frac{\partial y_1}{\partial z} - \frac{D_1 k_1}{T} \frac{\partial T}{\partial z} - D_2 \frac{\partial y_2}{\partial z} - \frac{D_2 k_2}{T} \frac{\partial T}{\partial z} \right) \right) = J_{43}$$

On dérive par ∂T^1 :

$$\begin{aligned}
& \left\{ -\frac{\rho \bar{M}}{RT^2} V C_p + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p1} \left(-\frac{D_1}{T^2} \frac{\partial y_1}{\partial z} - \frac{2D_1 k_1}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{D_1}{T^2} \frac{\partial y_1}{\partial z} y_1 + \frac{2D_1 k_1}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_1 \right) \right) \right. \\
& + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p1} \left(\frac{D_2}{T^2} \frac{\partial y_2}{\partial z} y_1 + \frac{2D_2 k_2}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_1 + \frac{D_3}{T^2} \frac{\partial y_3}{\partial z} y_1 + \frac{2D_3 k_3}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_1 \right) \right) \\
& + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p2} \left(-\frac{D_2}{T^2} \frac{\partial y_2}{\partial z} - \frac{2D_2 k_2}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{D_2}{T^2} \frac{\partial y_2}{\partial z} y_2 + \frac{2D_2 k_2}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_2 \right) \right) \\
& \left. + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(C_{p3} \left(\frac{D_3}{T^2} \frac{\partial y_3}{\partial z} y_2 + \frac{2D_3 k_3}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_2 + \frac{D_1}{T^2} \frac{\partial y_1}{\partial z} y_2 + \frac{2D_1 k_1}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_2 \right) \right) \right\}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(Cp_3 \left(-\frac{D_3}{T^2} \frac{\partial y_3}{\partial z} - \frac{2D_3 k_3}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{D_3}{T^2} \frac{\partial y_3}{\partial z} y_3 + \frac{2D_3 k_3}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_3 \right) \right) \\
 & + \frac{\rho \bar{M}}{RT} \left(Cp_3 \left(\frac{D_1}{T^2} \frac{\partial y_1}{\partial z} y_3 + \frac{2D_1 k_1}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_3 + \frac{D_2}{T^2} \frac{\partial y_2}{\partial z} y_3 + \frac{2D_2 k_2}{T^3} \frac{\partial T}{\partial z} y_3 \right) \right) \left\} \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{2\lambda}{h^2} = J_{44}
 \end{aligned}$$

Les J_{ij} sont les éléments de la matrice Jacobienne.

D'après les différences finies on a :

$$\frac{\partial^2 y_k}{\partial z^2} = \frac{y_k^2 - 2y_k^1 + y_k^0}{h^2}$$

et

$$\frac{\partial y_k}{\partial z} = \frac{y_k^2 - y_k^0}{2h}$$

La méthode de newton nous permet de faire l'approximation suivant :

$$X^{i+1} = X^i + \delta X^i$$

On aura donc :

$$\frac{\partial^2 y_k}{\partial z^2} = \frac{\delta y_k^1 - \delta y_k^0}{h^2} \dots \dots \dots (*)$$

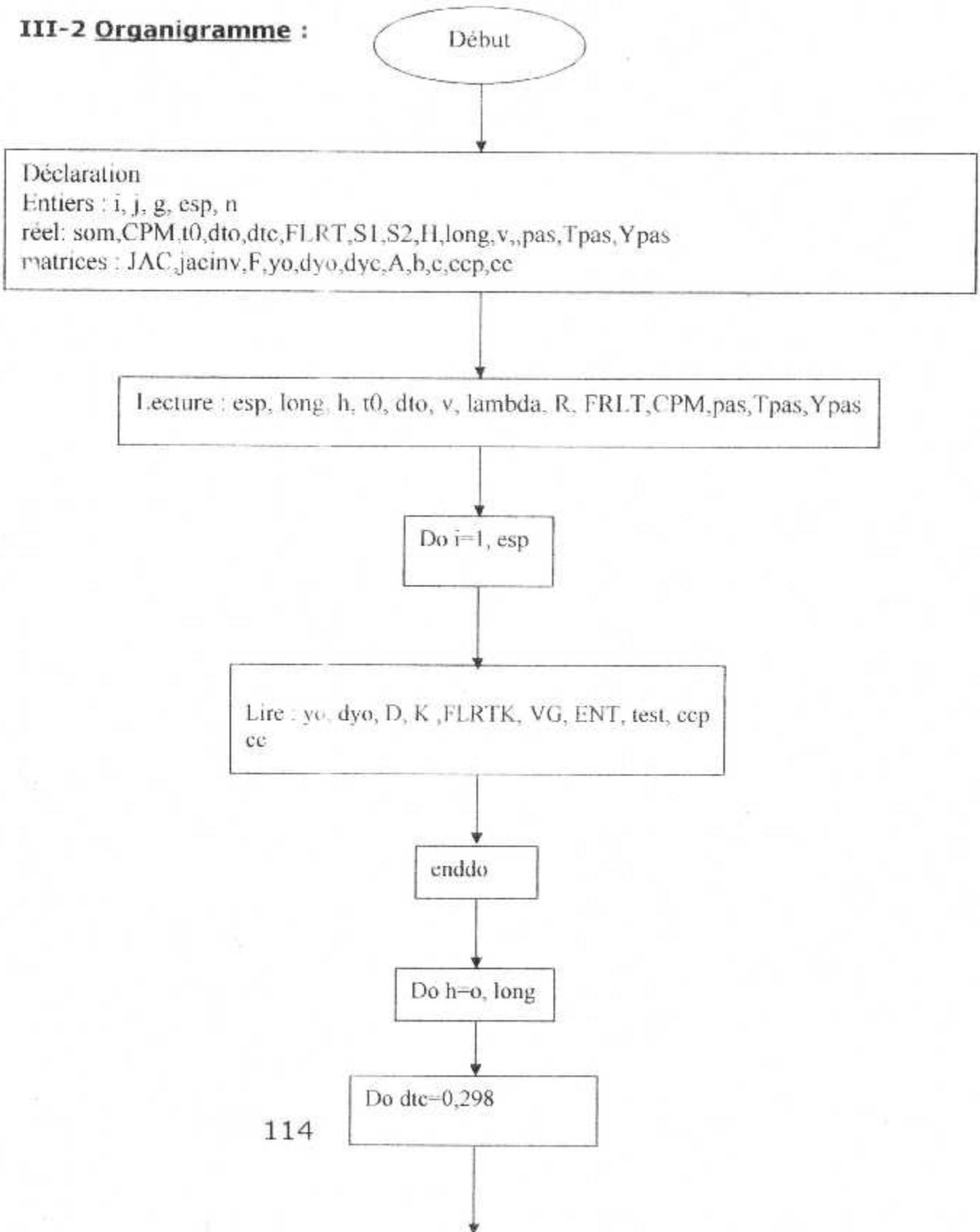
Et

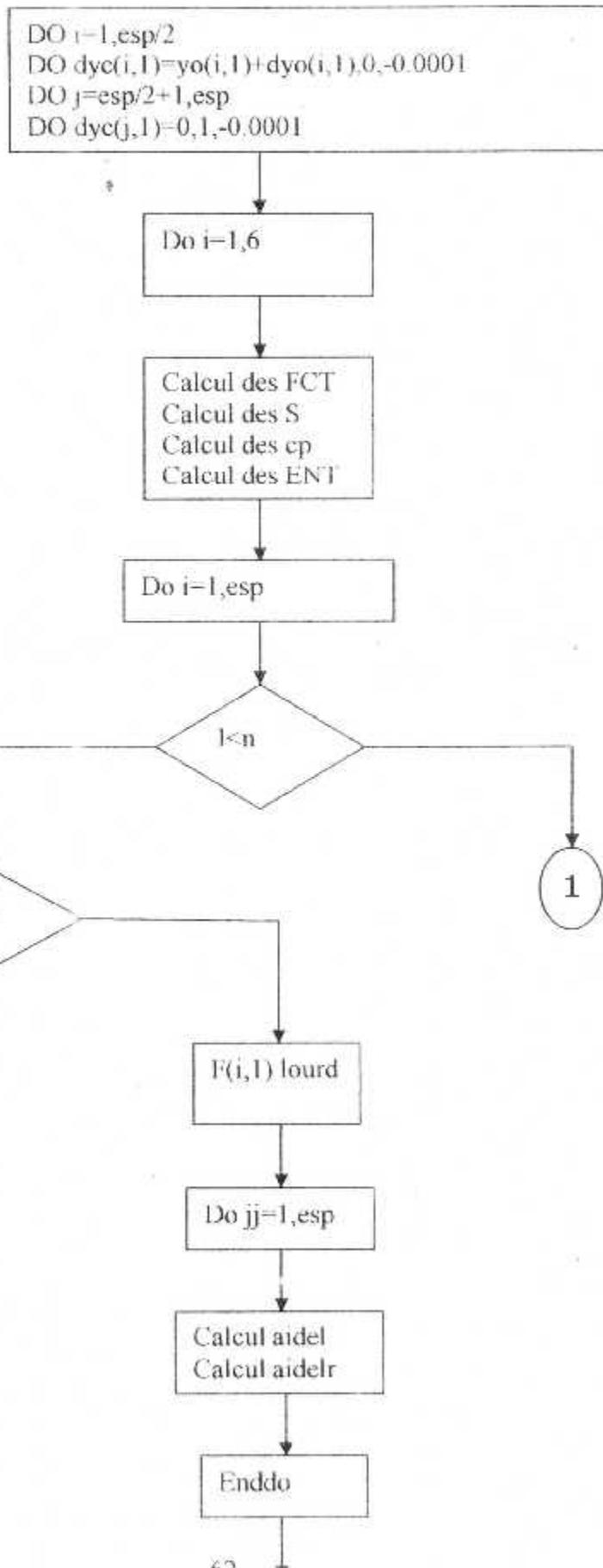
$$\frac{\partial y_k}{\partial z} = \frac{\delta y_k^1 + \delta y_k^0}{2h} \dots \dots \dots (**)$$

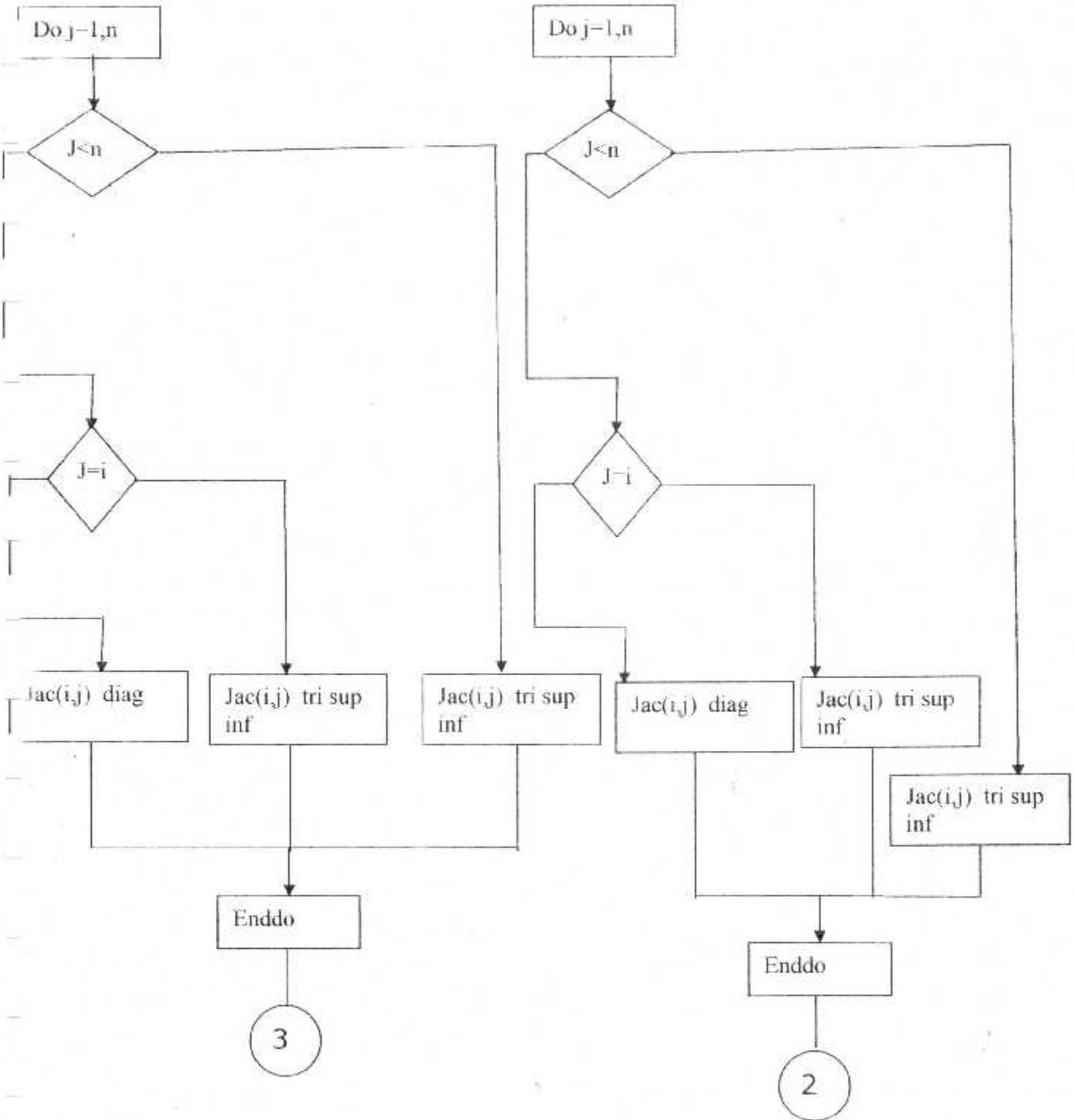
On introduisant (*) et (**) dans les (J_{ij}) nous aurons les éléments de la matrice jacobienne plus simples.

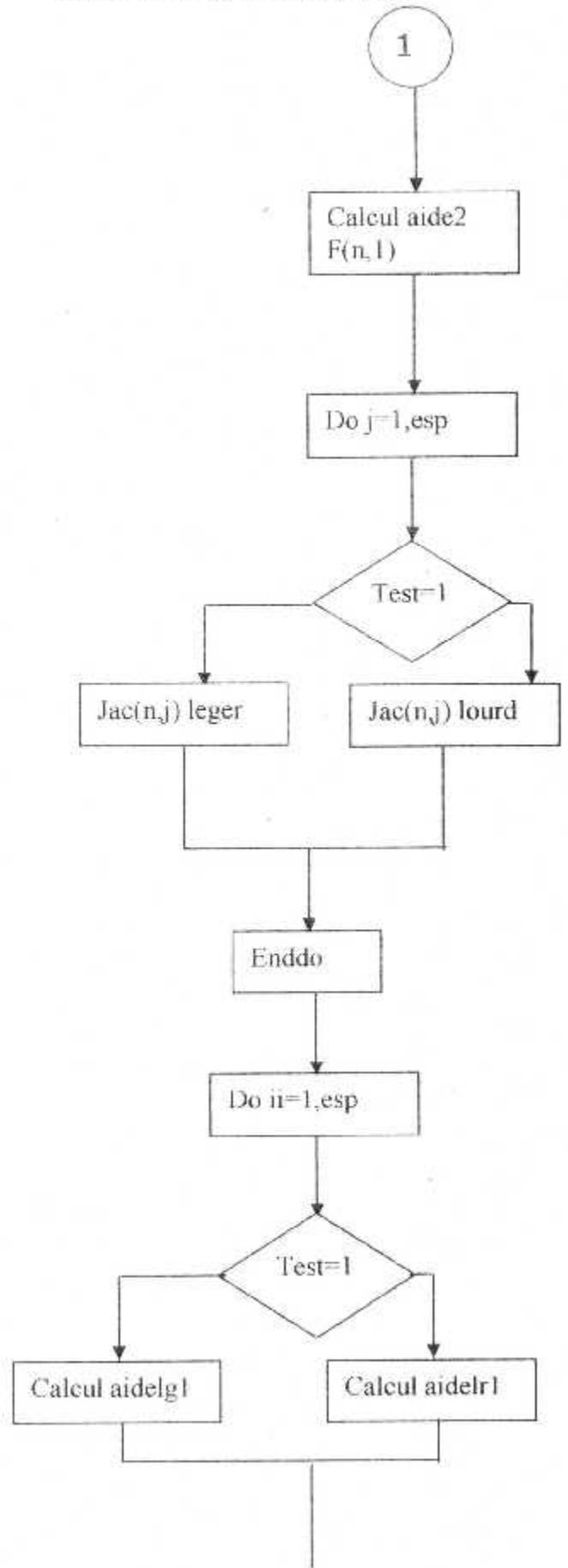
Organigramme

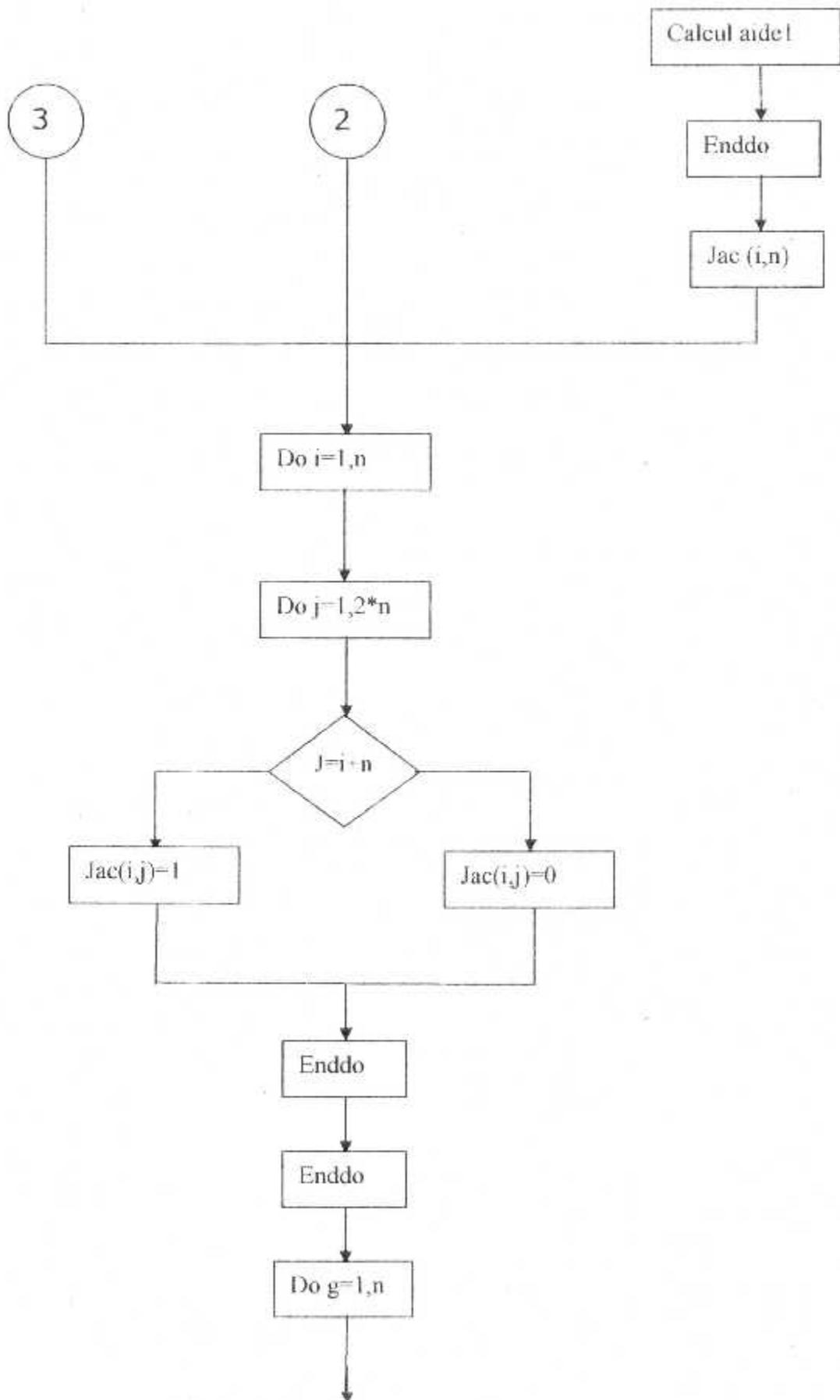
III-2 Organigramme :

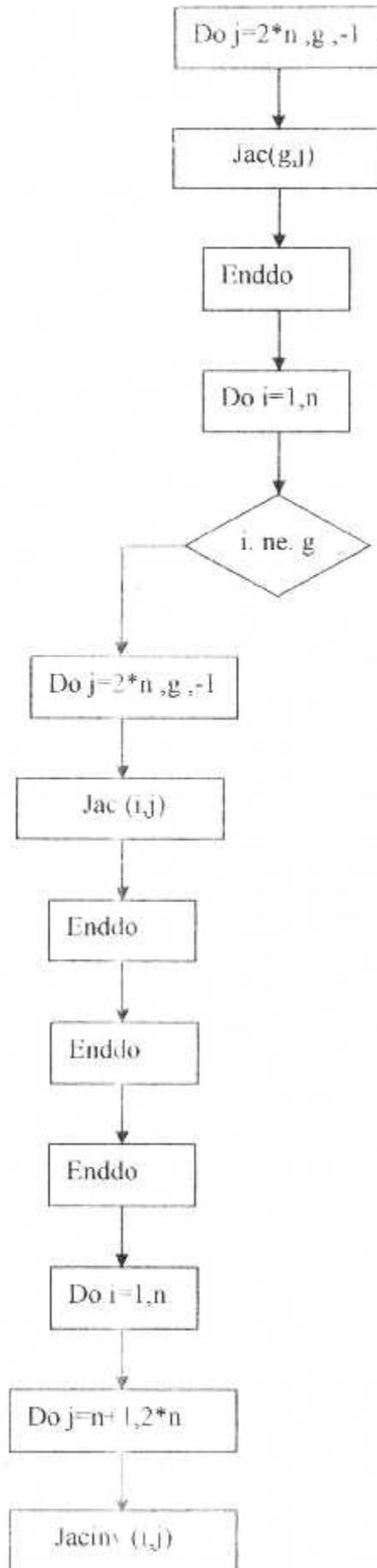


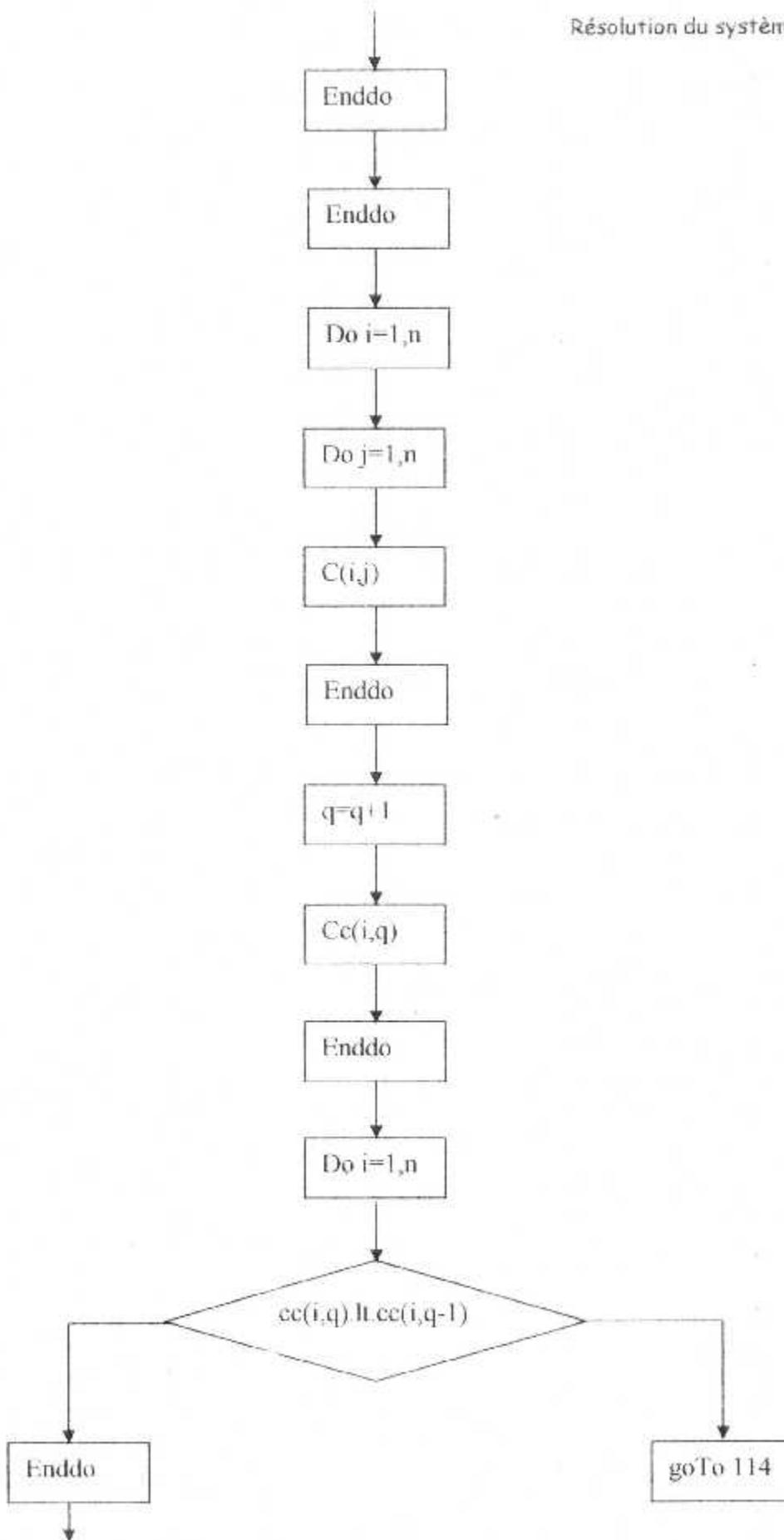


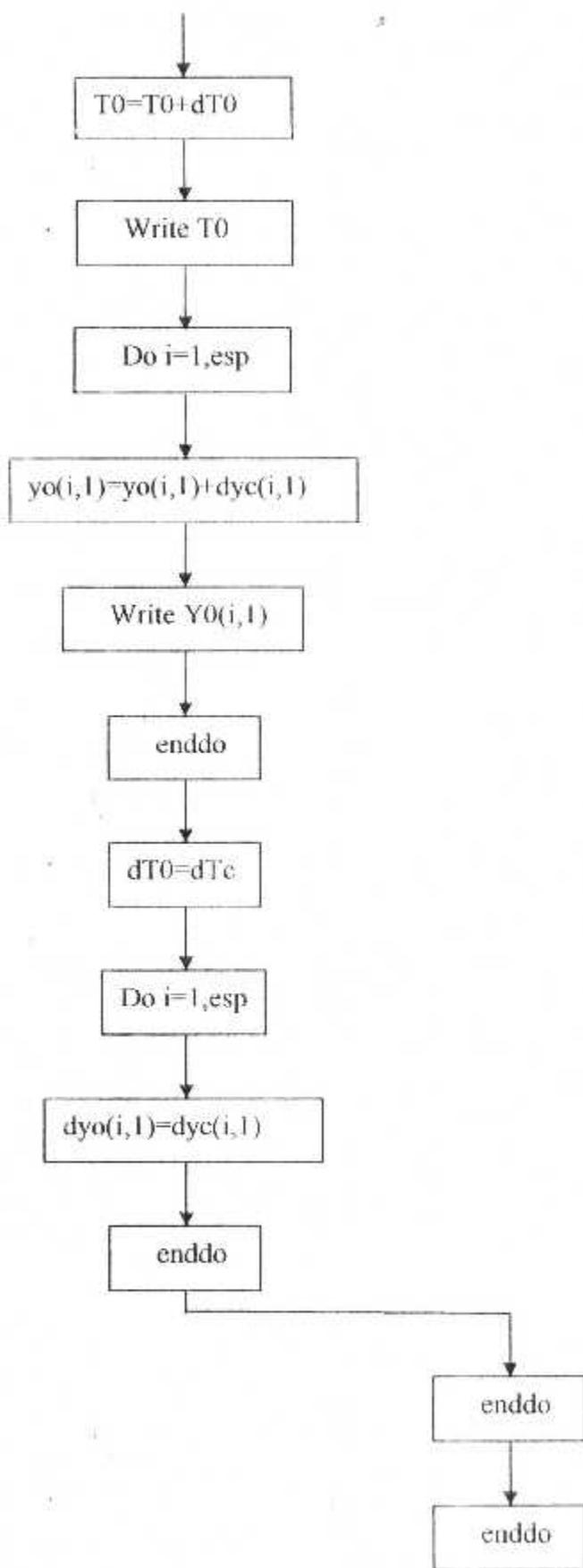


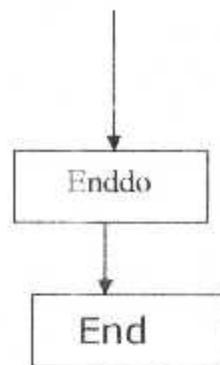






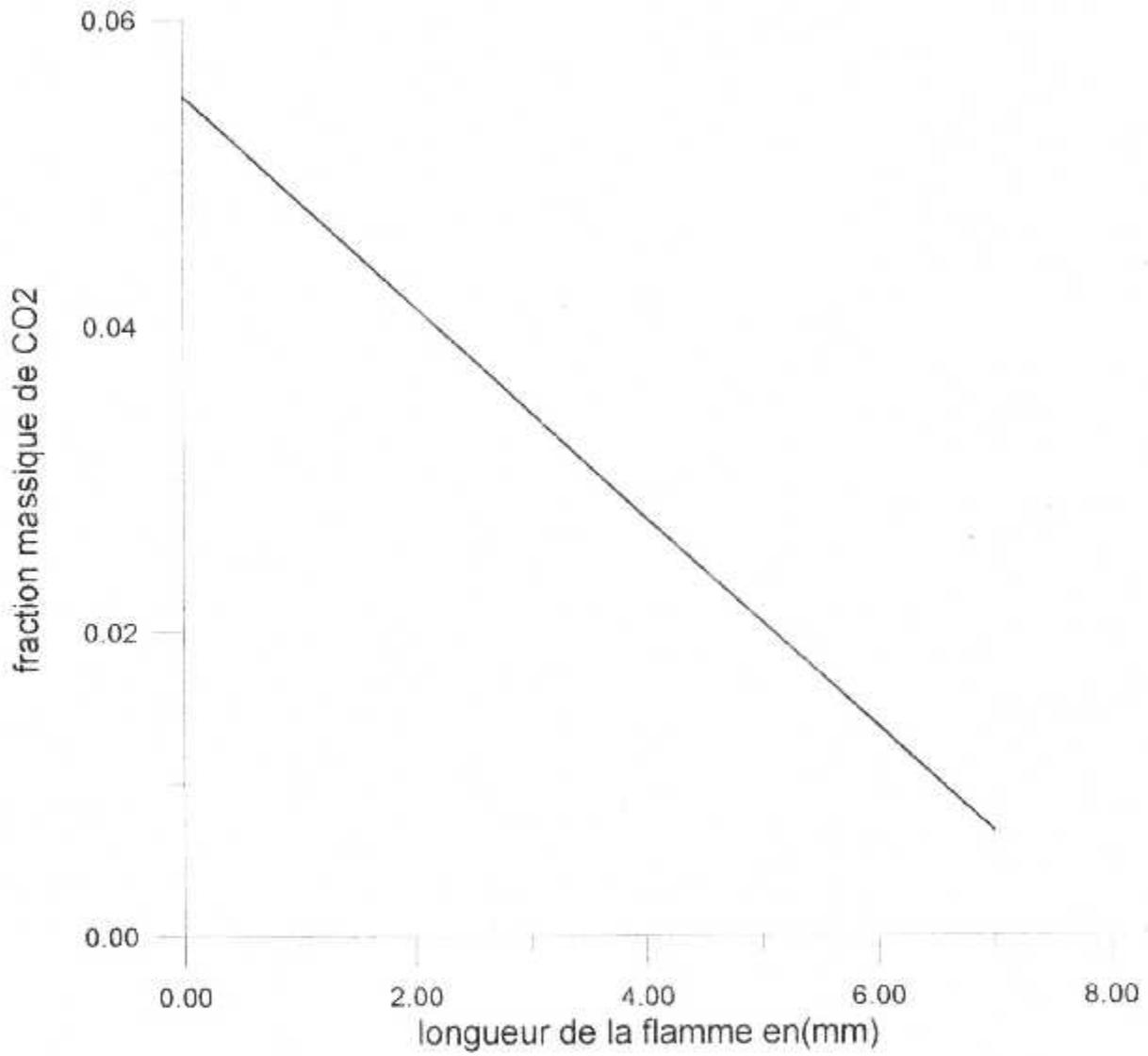




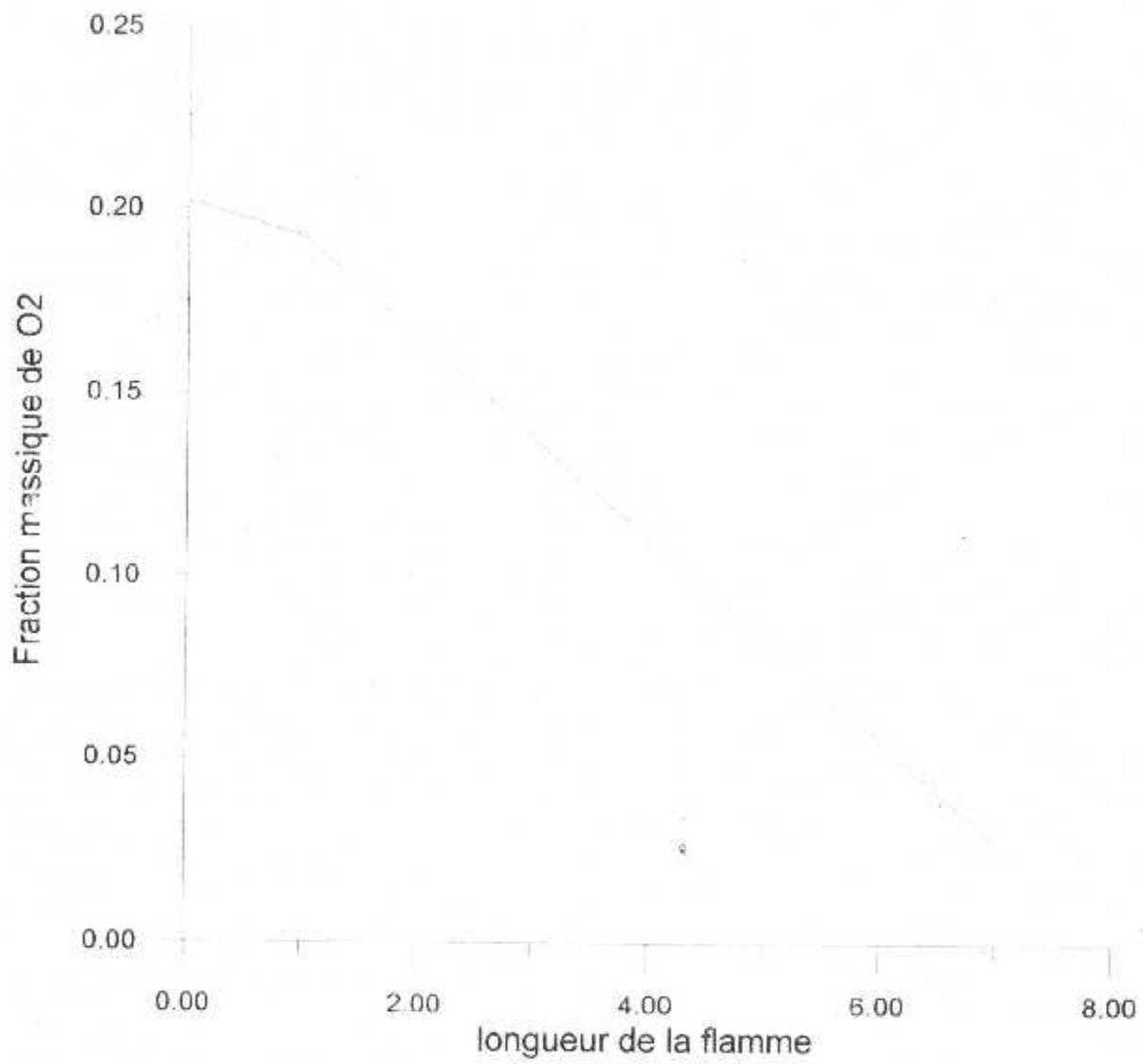


Graphes et discussions

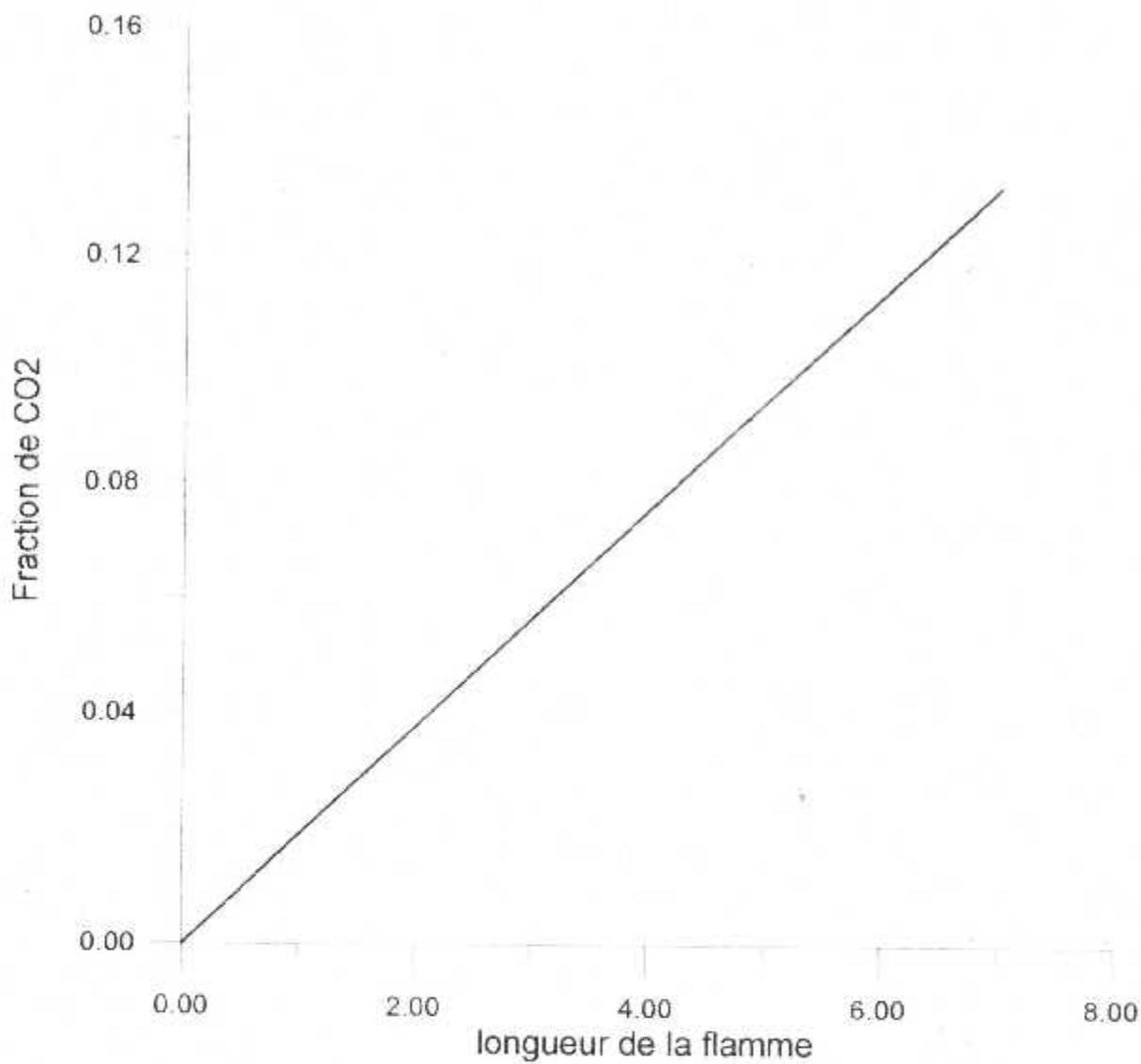
III-3-1 Graphes :



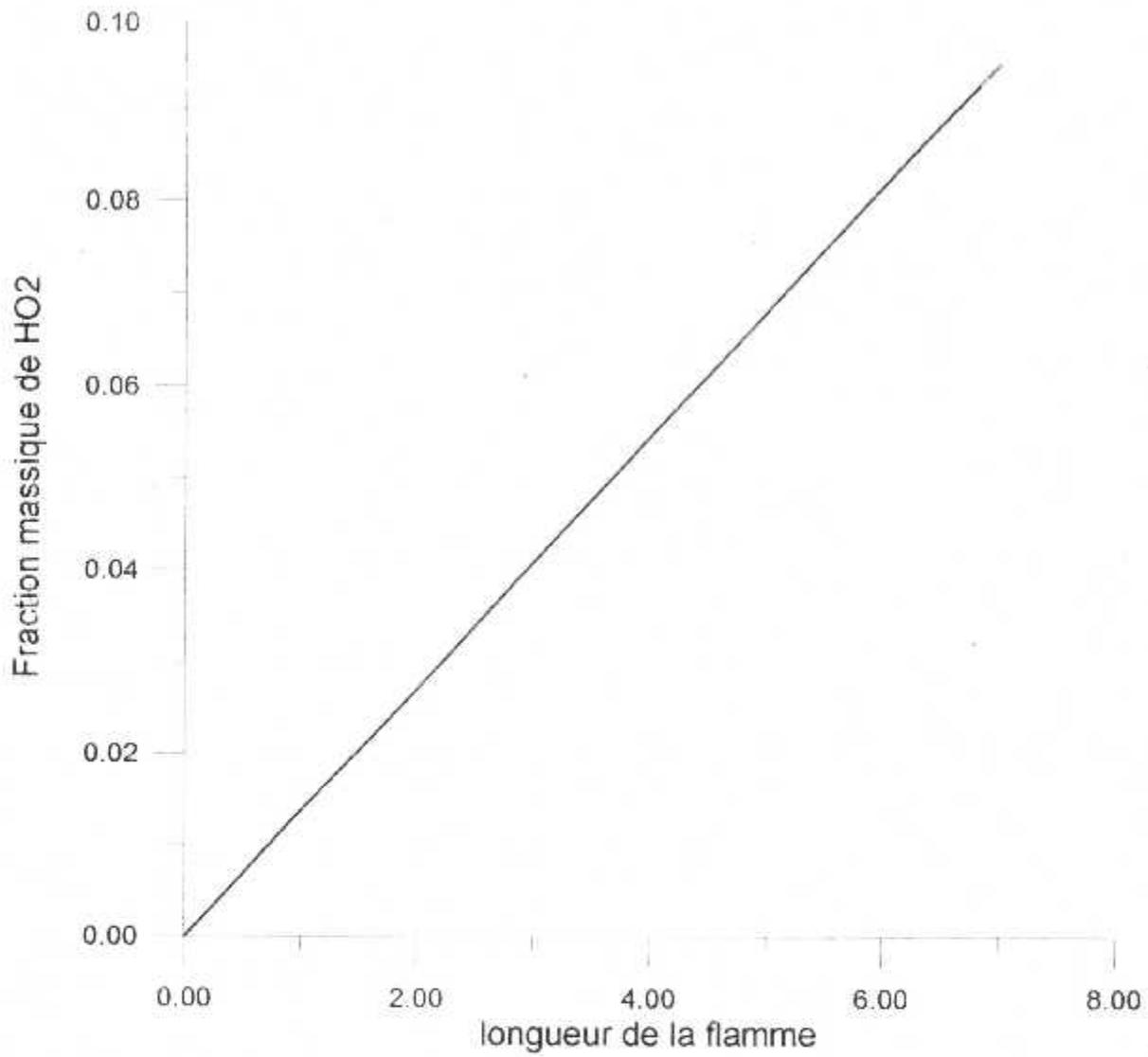
- Graphe 1-



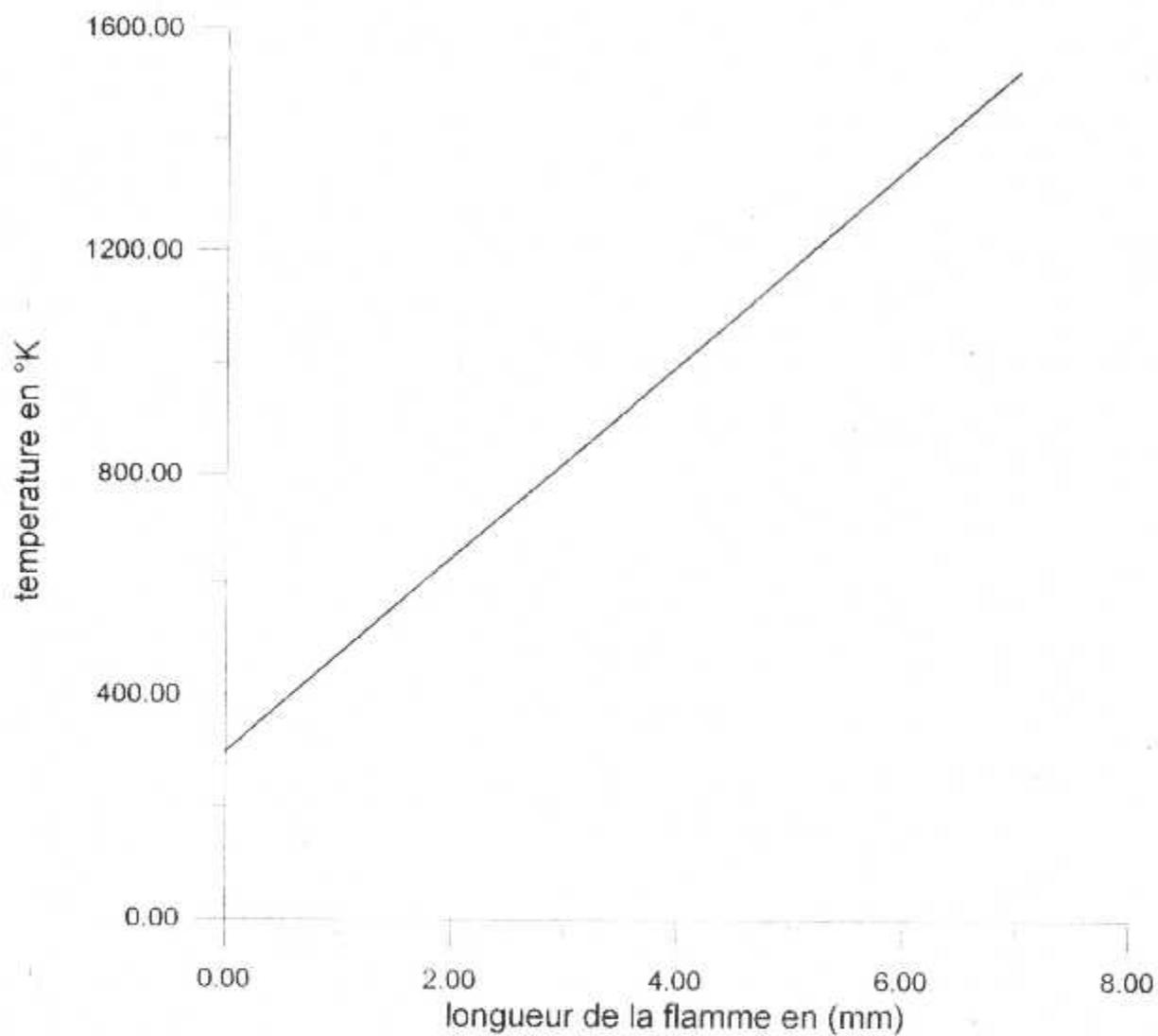
- Graphe 2 -



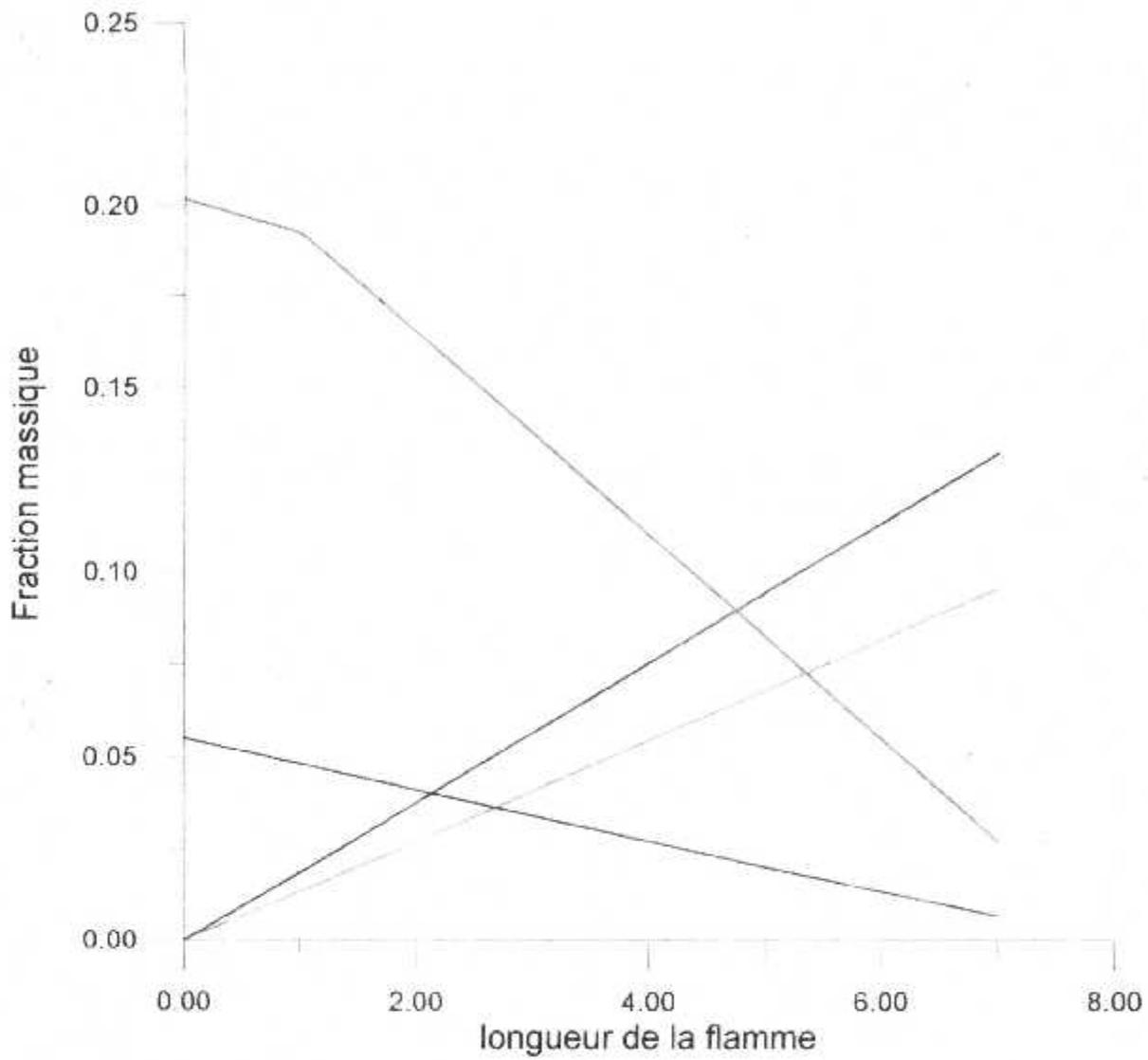
- Graphe 3-



- Graphe 4-

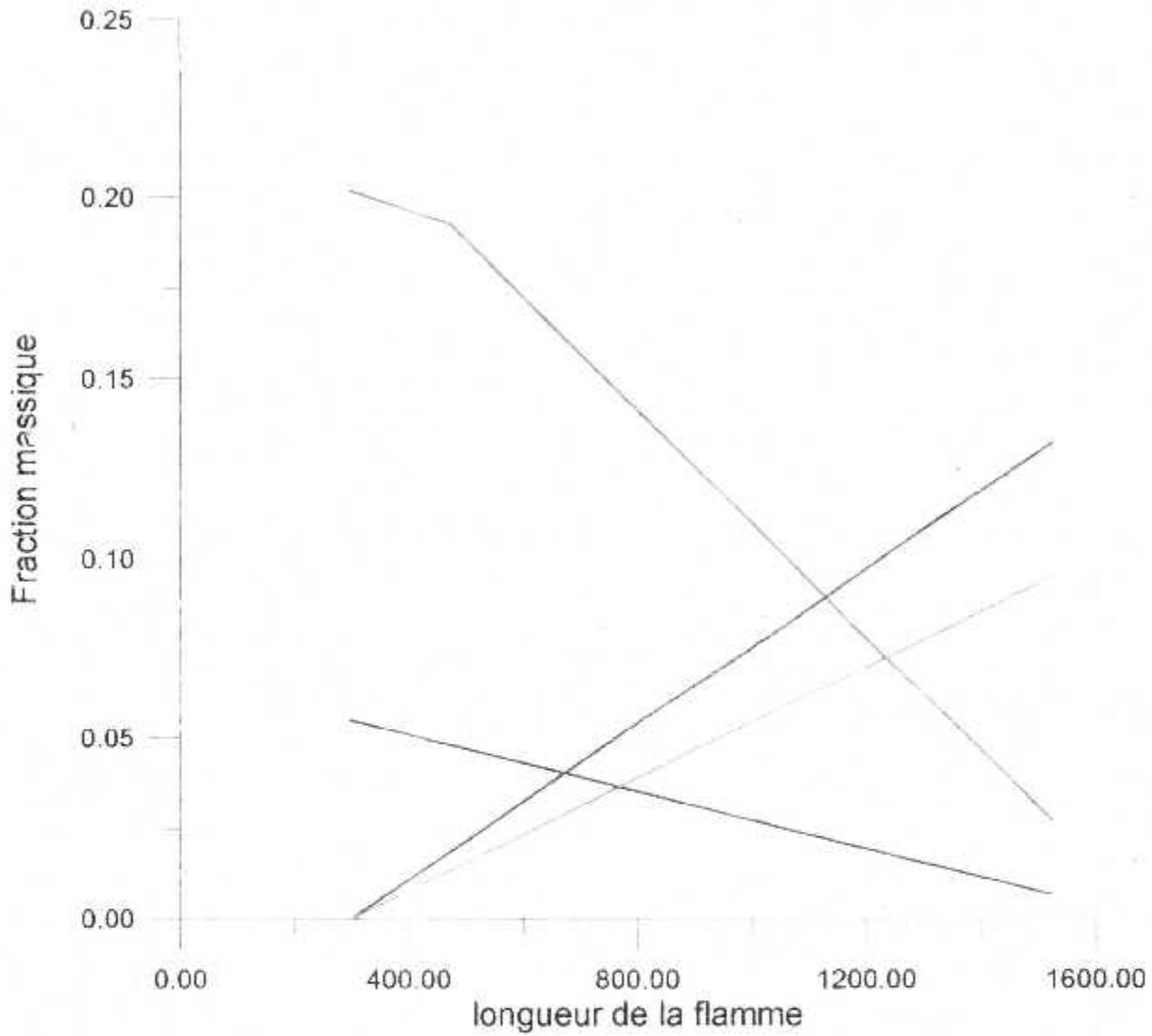


- Graphe 5-



- CH₄
- - - O₂
- ... H₂O
- · - · CO₂

-Graphe 6-



-Graphe 7-

- CH₄
- O₂
- H₂O
- CO₂

III-3-2 Discussions :

D'après le graphe 6 on distingue :

Avant la combustion nous avons le CH_4 , le O_2 et le N_2 .

CH_4 : c'est le carburant

O_2 : c'est le comburant

La fraction massique du CH_4 diminue ce qui nous permet de dire qu'il commence à disparaître jusqu'à la fin de la combustion car le H va rompre le C pour composer un autre élément (H_2O) avec le O_2 qui est en train de diminuer en même temps que le méthane avec une diminution différente. Ce dernier entre aussi dans une autre composition avec le C en donnant le CO_2 qui augmente proportionnellement au H_2O et inversement proportionnel avec le CH_4 et O_2 jusqu'à la fin de la combustion où on trouve que le H_2O et le CO_2 avec une très faible fraction massique de CH_4 et O_2 .

Le N_2 garde toujours sa fraction massique parce qu'il est un élément non combustible.

La température augmente automatiquement puisqu'il y a une réaction chimique qui cède de la chaleur.

Conclusion

Les connaissances relatives aux caractéristiques physico-chimiques des carburants et aux processus de combustion ont été acquises le plus souvent en laboratoire, par des spécialistes de la recherche fondamentale, et dans des conditions expérimentales parfois très éloignées de celles rencontrées dans les moteurs et les foyers industriels.

Donc pour améliorer et avoir plus de connaissances sur ce phénomène les physiciens ont essayé de modéliser la flamme ce qui est le thème de notre projet la modélisation des flammes plates prémélangées monodimensionnelles.

Les résultats que nous avons obtenus après la modélisation semblent acceptables car ils sont d'une précision comparable à celle des résultats exacts, néanmoins ces résultats peuvent être améliorés en considérant une plus grande précision des données qui sont calculées expérimentalement.

Annexe A :

resultat du pas

h= 1.000000E-03

temp= 298.175000

yo(1,1) 5.499313E-02

yo(2,1) 2.201725E-01

yo(3,1) 1.887500E-05

yo(4,1) 1.362500E-05

cp 1 1.427068E+07

cp 2 1246401.000000

cp 3 1094331.000000

cp 4 2621002.000000

cp 5 3068251.000000

cp 6 1094331.000000

ENT 1 356679.900000

ENT 2 31152.430000

ENT 3 27351.590000

ENT 4 65509.060000

ENT 5 76687.550000

ENT 6 27351.590000

0

resultat du pas

h= 1.001000

temp= 473.175000

yo(1,1) 4.811813E-02

yo(2,1) 1.926475E-01

yo(3,1) 1.889388E-02

yo(4,1) 1.363862E-02

cp 1 2.264618E+07

cp 2 1977902.000000

cp 3 1736581.000000

cp 4 4159253.000000

cp 5 4869002.000000

cp 6 1736581.000000

ENT 1 3.963648E+09

ENT 2 3.461823E+08

ENT 3 3.039451E+08

ENT 4 7.279733E+08

ENT 5 8.521971E+08

ENT 6 3.039451E+08

0

resultat du pas

h= 2.001000

temp= 648.175000

yo(1,1) 4.124312E-02

yo(2,1) 1.651225E-01

yo(3,1) 3.776887E-02

yo(4,1) 2.726362E-02
cp 1 3.102168E+07
cp 2 2709402.000000
cp 3 2378831.000000
cp 4 5697503.000000
cp 5 6669751.000000
cp 6 2378831.000000
ENT 1 1.085836E+10
ENT 2 9.483583E+08
ENT 3 8.326502E+08
ENT 4 1.994268E+09
ENT 5 2.334579E+09
ENT 6 8.326502E+08

0

resultat du pas

h= 3.001000

temp= 823.175000

yo(1,1) 3.436812E-02

yo(2,1) 1.375975E-01

yo(3,1) 5.664387E-02

yo(4,1) 4.088862E-02

cp 1 3.939718E+07

cp 2 3440902.000000

cp 3 3021081.000000

cp 4 7235753.000000

cp 5 8470501.000000

cp 6 3021081.000000

ENT 1 2.068451E+10

ENT 2 1.806559E+09

ENT 3 1.586143E+09

ENT 4 3.798951E+09

ENT 5 4.447225E+09

ENT 6 1.586143E+09

0

resultat du pas

h= 4.001000

temp= 998.175000

yo(1,1) 2.749312E-02

yo(2,1) 1.100725E-01

yo(3,1) 7.551887E-02

yo(4,1) 5.451362E-02

cp 1 4.777268E+07

cp 2 4172402.000000

cp 3 3663331.000000

cp 4 8774002.000000

cp 5 1.027125E+07

cp 6 3663331.000000

ENT 1 3.344207E+10

ENT 2 2.920785E+09

ENT 3 2.564423E+09

ENT 4 6.142021E+09
ENT 5 7.190132E+09
ENT 6 2.564423E+09
0

resultat du pas

h= 5.001000

temp= 1173.175000

yo(1,1) 2.061813E-02

yo(2,1) 8.254748E-02

yo(3,1) 9.439387E-02

yo(4,1) 6.813862E-02

cp 1 5.614818E+07

cp 2 4903901.000000

cp 3 4305581.000000

cp 4 1.031225E+07

cp 5 1.207200E+07

cp 6 4305581.000000

ENT 1 4.913105E+10

ENT 2 4.291036E+09

ENT 3 3.767490E+09

ENT 4 9.023478E+09

ENT 5 1.056330E+10

ENT 6 3.767490E+09
0

resultat du pas

h= 6.001000

temp= 1348.175000

yo(1,1) 1.374313E-02

yo(2,1) 5.502248E-02

yo(3,1) 1.132689E-01

yo(4,1) 8.176363E-02

cp 1 6.452368E+07

cp 2 5635401.000000

cp 3 4947831.000000

cp 4 1.185050E+07

cp 5 1.387275E+07

cp 6 4947831.000000

ENT 1 6.775147E+10

ENT 2 5.917311E+09

ENT 3 5.195345E+09

ENT 4 1.244332E+10

ENT 5 1.456673E+10

ENT 6 5.195345E+09
0

resultat du pas

h= 7.001000

temp= 1523.175000

yo(1,1) 6.868125E-03

yo(2,1) 2.749748E-02

yo(3,1) 1.321439E-01

yo(4,1) 9.538862E-02
cp 1 7.289918E+07
cp 2 6366901.000000
cp 3 5590081.000000
cp 4 1.338875E+07
cp 5 1.567350E+07
cp 6 5590081.000000
ENT 1 8.930331E+10
ENT 2 7.799612E+09
ENT 3 6.847988E+09
ENT 4 1.640156E+10
ENT 5 1.920043E+10
ENT 6 6.847988E+09

0

Travail termine

Bibliographie :

- Burcat A. (1984) "Thermochemical data for combustion calculations " combustion chemistry , W.C. Gardiner ,Ed .,Springer-Verlag ,New York,455.
- Coffee T.P. and Heimerl J.M.(1981),"Transport Algorithms for premixed, laminar steady-state flames", Comb. and flame,43:273-289,
- Gordon S. et McBride B.J. (1971),"Computer Program for calculation of complex chemical equilibrium compositions, Rocket Performance, Incident and Reflected shocks, and Chapman-Jouguet Detonations. "NASA SP-273
- Gilbert R.G., Luther K., et troe J, ber. bunsenges. phys. Chem., 87, P169, (1983)
- Grcar j.f., kee R.J., smooke M.D. et miller J.A.(1986),"A hybrid newton/time-integration procedure for the solution of steady, laminar, one-dimensional, premix flames."Twenty-first symposium (international) on combustion, 1773.
- Hirschfelder J.O. and Curtiss C.F. and bird R.B. (1954), "molecular theory of gasses and liquids", john wiley & sons, Inc. New York
- Janaf (1971), "thermochemical tables", national standard reference data service, NSRDS-NBS 37
- kee R.J., Dixon-lewis J.,coltrin M.E. and miller J.A., "A Fortran computer code package for the evaluation of gas-phase multicomponent transport properties", sandia national laboratories report, SAND86-8246,UC-401,(1986),reprinted July 1992
- kee R.J grace J.F, smokke M.D Miller J.A Afortran program for modelling steady laminar one-dimensional premixed flames , sandia national laboratories report ,sand85-8240,UC-401,(1985),reprinted January 1993
- kee Rj, Rupley F.M . Miller J.A chemkin II: Afortran chemical kinetics package for the analysis of gas phase chemical kinetics sandia national laboratories report, sand89-8009B UC-706,(1989)

- kee Rj, Rupley F.M . Miller the Chemkin thermodynamic data Base sandia national laboratories report, sand87-8215 UC-4,(1987) Reprinted October 1992 .
- Westbrook C.k.and dryer F.L (1984) chemical kinetic Modeling of hydrocarbon combustion prog.Energy combust. Sci., vol. 10, pp.1-57
- Stewart p.H Larson C.W. et Golden D,.combustion and flame, 75.25 (1989)
- Pauwels J.F., volponi J.v. Miller J.A (1995)the oxydation of allen in a low pressure $H_2/O_2/Ar/C_3H_4$ flame. Combustion science and technology, vol 110-111,249.
- BORGHI R DESTRIAU M 1995 La combustion et les flames Edition technip, Paris ISBN 2-7108-0684-3
- CHOMIAK J(1989) combustion abacus press Gordon and Breach science publishers, ISBN 085626-453-9
- J.F GRIFFITHS. J.A.BARNARD1995 flame and combustion Blackie academic Professionale.ISBN 0-7514-0199-4
- TURNS S R 1996 An introduction to combustion concepts and Applications McGraw Hill Inc,. ISBN 0-07-911812-7
- TURBIEZ A.PAUWELS J.F.SOCHET L.R. POITOU S PERRIN M1997. chemical structure of laminar premixed natural gas flame influence of equivalence ratio Bull.soc.chim. Belg., 106.355-360.
- SURDYK D DEVYNCK P CRUELLE TURBIEZ A DESGROUX P Pauwels J.F. SOCHTE L R (1996) the effects of CH_3Cl and CH_2Cl_2 addition on a low- pressure stoichiometric $CH_4/O_2/N_2$ premixed laminar flat flame. Experimental and modeling studies combustion Technologies for a clean environment Book seres Enrgy combustion and the environment Gordon and Breach publishers.