



**HAL**  
open science

# Modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie en approche hybride Euler-Lagrange pour la simulation de foyers aéronautiques

Nicolas Dellinger

► **To cite this version:**

Nicolas Dellinger. Modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie en approche hybride Euler-Lagrange pour la simulation de foyers aéronautiques. Mécanique [physics.med-ph]. Sorbonne Université, 2019. Français. NNT : 2019SORUS074 . tel-02505172v2

**HAL Id: tel-02505172**

**<https://hal.science/tel-02505172v2>**

Submitted on 16 Oct 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale n°391 : Sciences mécaniques, acoustique, électronique et  
robotique de Paris (SMAER)

# THÈSE

pour obtenir le grade de docteur de

**Sorbonne Université**

Spécialité « Mécanique »

## **Modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie en approche hybride Euler-Lagrange pour la simulation de foyers aéronautiques**

présentée et soutenue publiquement par

**Nicolas DELLINGER**

le 30 septembre 2019 devant un jury composé de :

Rapporteur,	Bénédicte Cuénot	Chef de projet CFD/Combustion, CERFACS
Rapporteur,	Pascale Domingo	Directrice de recherche, CORIA
Examineur,	Stéphane Popinet	Directeur de recherche, Sorbonne Université - CNRS UMR 7190
Examineur,	Klaus-Peter Geigle	Chercheur, DLR
Directeur de thèse,	Guillaume Legros	Maître de conférences, Sorbonne Université - CNRS UMR 7190
Encadrant,	Nicolas Bertier	Ingénieur de recherche, ONERA
Co-encadrant,	Francis Dupoirieux	Adjoint au Directeur Scientifique Général, ONERA



---

# Remerciements

---

---

# Table des matières

---

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Modèles et méthodes numériques pour la simulation d'écoulements gaz-particules dans le code CEDRE</b>	<b>7</b>
1.1 Description eulérienne de la phase gazeuse . . . . .	8
1.1.1 Équations de Navier-Stokes d'un écoulement compressible multi-espèce réactif	8
1.1.2 Modélisation de la turbulence . . . . .	11
1.1.3 Modélisation de la combustion . . . . .	14
1.1.4 Méthodes numériques du solveur CHARME . . . . .	17
1.2 Description lagrangienne de la phase particulaire . . . . .	19
1.2.1 Équation de Williams-Boltzmann . . . . .	19
1.2.2 Méthodes numériques du solveur SPARTE . . . . .	20
1.2.3 Rétroaction des particules sur la phase gazeuse . . . . .	21
1.2.4 Définition des diamètres statistiques . . . . .	22
1.3 Couplage des solveurs CHARME et SPARTE . . . . .	22
<b>I Développement d'un modèle de particules de suie sphériques en approche lagrangienne dans le code CEDRE</b>	<b>25</b>
<b>2 Mise en place d'un modèle de nucléation de particules de suie en approche couplée Euler-Lagrange</b>	<b>27</b>
2.1 Extension du modèle de cinétique chimique du solveur CHARME . . . . .	28
2.1.1 Intégration du modèle de fall-off pour les réactions à trois corps . . . . .	28
2.1.2 Intégration de l'approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée . . . . .	29
2.1.3 Mise en place d'une méthodologie de simulation de réacteur à pression et enthalpie constantes . . . . .	31
2.1.4 Validation de l'implémentation du modèle de cinétique chimique . . . . .	32
2.2 Explicitation du terme source de nucléation de suie . . . . .	35
2.2.1 Calcul générique du terme source de nucléation . . . . .	35
2.2.2 Application à la nucléation par le modèle sectionnel DLR . . . . .	36
2.3 Implémentation d'un algorithme d'injection de particules de suie . . . . .	38
2.3.1 Choix des propriétés physiques des particules de suie injectées . . . . .	38
2.3.2 Description de l'algorithme d'injection de particules de suie . . . . .	39
<b>3 Mise en place de sous-modèles d'évolution chimique de particules de suie en approche lagrangienne</b>	<b>43</b>

3.1	Formulation d'un modèle générique d'évolution chimique . . . . .	44
3.2	Application aux sous-modèles d'évolution chimique de la littérature . . . . .	45
3.2.1	Addition de $C_2H_2$ . . . . .	45
3.2.2	Oxydation par $O_2$ . . . . .	46
3.2.3	Oxydation par OH . . . . .	47
3.2.4	Condensation des PAH . . . . .	47
3.3	Traitement de la fin de vie d'un réactant gazeux . . . . .	48
3.3.1	Adaptation préliminaire de l'opérateur d'intégration temporelle eulérien . . . . .	48
3.3.2	Limitation des sources de masse par espèce et par cellule . . . . .	48
3.4	Traitement de la fin de vie d'une particule . . . . .	49
3.4.1	Limitation des sources de masse par particule . . . . .	49
3.4.2	Choix du critère de suppression des particules de suie . . . . .	50
3.5	Cas-test 0D . . . . .	50
<b>4</b>	<b>Développement d'un algorithme de collision entre particules sphériques adapté aux interactions entre particules de suie</b> . . . . .	<b>55</b>
4.1	Modélisation des interactions entre particules de suie . . . . .	56
4.1.1	Coalescence et agrégation de particules . . . . .	56
4.1.2	Restriction aux particules sphériques . . . . .	56
4.2	Dérivation d'un opérateur de collision . . . . .	57
4.2.1	Formulation faible de l'opérateur de collision . . . . .	57
4.2.2	Expression de la fréquence de collision entre particules . . . . .	59
4.3	Mise en place d'un algorithme de collision stochastique entre particules sphériques . . . . .	59
4.4	Vers une extension aux agrégats de particules sphériques . . . . .	60
4.5	Cas-test 0D . . . . .	61
4.5.1	Particules sphériques . . . . .	62
4.5.2	Agrégats de particules sphériques . . . . .	64
<b>5</b>	<b>Développement d'un algorithme de réduction adapté à la simulation de grandes populations de particules</b> . . . . .	<b>69</b>
5.1	Choix d'une méthodologie de réduction de population . . . . .	70
5.2	Description de l'algorithme de réduction de population . . . . .	70
5.2.1	Choix des variables de réduction . . . . .	70
5.2.2	Identification des particules redondantes . . . . .	71
5.2.3	Suppression des particules redondantes . . . . .	74
5.2.4	Limites de l'algorithme . . . . .	75
5.3	Cas-test 1D . . . . .	76
5.3.1	Influence du nombre maximal de particules . . . . .	76
5.3.2	Influence de la période de réduction . . . . .	78
<b>6</b>	<b>Évaluation du modèle de suie sur des flammes stationnaires prémélangées <math>C_2H_4</math>/air</b> . . . . .	<b>81</b>
6.1	Présentation de la configuration . . . . .	82
6.1.1	Géométrie . . . . .	82
6.1.2	Mesures expérimentales . . . . .	82
6.1.3	Points de fonctionnement . . . . .	83
6.2	Modélisation de la configuration et méthodes numériques . . . . .	83
6.2.1	Domaine de calcul et conditions aux limites . . . . .	83
6.2.2	Méthodes numériques . . . . .	83
6.2.3	Modèles de transport . . . . .	84
6.3	Analyse des résultats . . . . .	85
6.3.1	Phase dispersée . . . . .	85
6.3.2	Phase gazeuse . . . . .	85

6.3.3	Résultats complémentaires . . . . .	85
<b>II</b>	<b>Évaluation du modèle de suie sur une configuration de complexité aéronautique</b>	<b>91</b>
<b>7</b>	<b>Présentation de la configuration FIRST</b>	<b>93</b>
7.1	Géométrie de la configuration . . . . .	94
7.2	Point de fonctionnement étudié . . . . .	95
7.3	Mesures expérimentales . . . . .	95
7.3.1	Caractérisation de la phase dispersée . . . . .	95
7.3.2	Caractérisation de la phase gazeuse . . . . .	96
7.3.3	Caractérisation des parois . . . . .	96
7.4	Simulations numériques . . . . .	96
<b>8</b>	<b>Modélisation et méthodes numériques</b>	<b>103</b>
8.1	Domaine de calcul, maillage et conditions aux limites . . . . .	104
8.1.1	Simplification de la géométrie . . . . .	104
8.1.2	Maillage . . . . .	104
8.1.3	Conditions aux limites . . . . .	104
8.2	Méthodes numériques et modèles hors combustion. . . . .	105
8.2.1	Stratégie de calcul . . . . .	105
8.2.2	Méthodes numériques . . . . .	105
8.2.3	Modèle de turbulence . . . . .	106
8.2.4	Procédure de réduction acoustique . . . . .	106
8.3	Modélisation de la combustion . . . . .	108
8.3.1	Motivations de l'AEQS . . . . .	108
8.3.2	Choix des espèces AEQS . . . . .	108
8.3.3	Validations élémentaires . . . . .	109
<b>9</b>	<b>Analyse des résultats</b>	<b>115</b>
9.1	Aérothermochimie et évolution de la phase dispersée dans la configuration FIRST . . . . .	116
9.1.1	Aérodynamique de l'écoulement . . . . .	116
9.1.2	Structure de la flamme . . . . .	117
9.1.3	Évolution de la phase dispersée . . . . .	120
9.2	Comparaison aux mesures expérimentales . . . . .	127
9.2.1	Profils de vitesse . . . . .	127
9.2.2	Profils de température . . . . .	130
9.2.3	Champs de radical OH et de PAH . . . . .	130
9.2.4	Champ et profils de fraction volumique de suie . . . . .	130
9.3	Calcul complémentaire de puissances et flux radiatifs . . . . .	135
9.3.1	Méthode et modèles de calcul. . . . .	135
9.3.2	Champ de puissance radiative . . . . .	136
9.3.3	Champ de flux radiatif sur les parois latérales . . . . .	136
9.3.4	Contribution des particules de suie aux puissance et flux radiatifs . . . . .	136
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>141</b>
<b>A</b>	<b>Résultats complémentaires sur la configuration de Xu et al.</b>	<b>145</b>
<b>B</b>	<b>Résultats complémentaires sur la configuration FIRST</b>	<b>177</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>179</b>

---

# Liste des tableaux

---

2.1	Vitesses de flamme laminaire pour les mécanismes squelettiques et ARC. . . . .	35
2.2	Masse molaire, composition atomique et diamètre de collision des sections de PAH et PAH*. . . . .	38
3.1	Réactions et constantes cinétiques du mécanisme HACA. . . . .	45
4.1	Nombre de particules numériques initialement créées pour chaque cas-test. . . . .	62
6.1	Grandeurs mesurées par Xu et al. . . . .	82
6.2	Paramètres des flammes de prémélange de Xu et al. . . . .	83
7.1	Caractéristiques du point de fonctionnement de référence. . . . .	95
8.1	Cibles de validation de l'AEQS par cas élémentaire. . . . .	110
8.2	Erreur sur les pics (si existants) des variables d'intérêt dans une flamme de prémélange en fonction de la richesse. . . . .	111
9.1	Puissances émise et absorbée en volume et aux limites dans le domaine de calcul. . . . .	136
9.2	Puissances émise et absorbée en volume et aux limites dans le domaine de calcul pour le calcul complet (C) et les quatre calculs partiels (AG+S), (AG+S+AL), (G+AS), (S). . . . .	139



---

# Table des figures

---

1.1	Illustration de la théorie de la cascade énergétique de Richardson et Kolmogorov dans l'espace spectral. . . . .	11
1.2	Couplage CHARME-SPARTE standard. . . . .	22
2.1	Illustration de l'algorithme de simulation d'un réacteur HP . . . . .	31
2.2	Comparaison des profils de température en fonction du temps. . . . .	32
2.3	Comparaison des profils de température et de fraction massique de $C_2H_2$ en fonction de la position dans le domaine de calcul pour le mécanisme squelettique. . . . .	34
2.4	Comparaison des profils de température et de fraction massique de $C_2H_2$ en fonction de la position dans le domaine de calcul pour le mécanisme ARC. . . . .	34
2.5	Définition des sections de PAH et PAH* . . . . .	37
2.6	Description de l'algorithme d'injection de particules. . . . .	40
3.1	Illustration du splitting d'opérateur d'ordre 1 de Lie, avec $\Delta t$ le pas de temps et $\mathbf{Q}$ le vecteur d'état de la phase gazeuse. . . . .	48
3.2	Couplage CHARME-SPARTE pour la limitation des sources de couplage. . . . .	49
3.3	Comparaison de l'évolution du diamètre des particules, de la température et de la masse des espèces d'intérêt dans le domaine de calcul en fonction du temps et de la procédure de couplage CHARME-SPARTE. . . . .	52
4.1	Observation par TEM d'agrégats de suie dans une flamme de prémélange éthylène-air à pression atmosphérique. . . . .	56
4.2	Illustration des procédures de coalescence et de pseudo-agrégation de particules numériques. . . . .	60
4.3	Illustration des procédures de coalescence et d'agrégation des agrégats numériques. . . . .	61
4.4	Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour les cas M1 et M2. Erreur relative pour $d_{10}$ , $\sigma_d$ et $N_v$ . . . . .	62
4.5	Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour les cas B1 et B2. Erreur relative pour $d_{10}$ , $\sigma_d$ et $N_v$ . . . . .	63
4.6	Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour le cas M2 sans et avec agrégats. Erreur relative pour $d_{10}$ , $\sigma_d$ et $N_v$ . . . . .	64
4.7	Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour le cas B2 sans et avec agrégats. Erreur relative pour $d_{10}$ , $\sigma_d$ et $N_v$ . . . . .	65
4.8	Comparaison de l'évolution du diamètre des particules, de la température et de la masse des espèces d'intérêt dans le domaine de calcul en fonction du temps sans et avec agrégats. . . . .	67

5.1	Définition du temps de séjour restant d'une particule dans une cellule. . . . .	70
5.2	Population-exemple de 16 particules numériques dans l'espace d'état $(d, T_s)$ . . . . .	71
5.3	Facteur de correction de la fréquence de collision pour le régime continu en fonction du diamètre des particules. . . . .	75
5.4	Moments statistiques de la distribution en taille des particules en fonction de $\tilde{N}$ dans les plans à 20 mm et 30 mm en aval de l'entrée du domaine. . . . .	76
5.5	Distributions en taille des particules en fonction de $\tilde{N}$ dans les plans à 20 mm et 30 mm en aval de l'entrée du domaine. . . . .	77
5.6	Dynamique de la distribution en taille des particules pour $\tilde{N} = 2048$ entre les plans à 20 mm et à 30 mm en aval de l'entrée du domaine. . . . .	77
5.7	Moments statistiques de la distribution en taille des particules en fonction de $k$ dans les plans à 20 mm et 30 mm en aval de l'entrée du domaine. . . . .	78
6.1	Représentation en 2D de la configuration de Xu et al. . . . .	82
6.2	Fraction volumique de suie et diamètre moyen des particules en fonction de la distance au brûleur. . . . .	86
6.3	Fractions molaires des espèces majoritaires en fonction de la distance au brûleur. . . . .	87
7.1	Schéma de la configuration FIRST et topologie de l'écoulement. . . . .	94
7.2	Géométrie de la configuration FIRST sans et avec l'enceinte pressurisée. . . . .	95
7.3	Champs moyens de fraction volumique de suie issus de la littérature dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	100
8.1	Coupe du maillage dans le plan des injecteurs secondaires d'air. . . . .	104
8.2	Coupes transversales du maillage à 6 hauteurs $Z$ . . . . .	105
8.3	Définition des premier et deuxième voisinages par sommet du fond de chambre. . . . .	107
8.4	Évolution du coefficient de relaxation en pression en fonction de la température. . . . .	107
8.5	Durée de vie $\tau^*$ des espèces du mécanisme squelettique sur un cas de réacteur HP à la stoechiométrie pour une pression de 3 bar et une température initiale de 1400 K. . . . .	109
8.6	Délai d'auto-inflammation et température des gaz brûlés dans un réacteur HP en fonction de la richesse sans et avec AEQS pour une pression de 3 bar et une température initiale de 1400 K. . . . .	110
8.7	Vitesse de flamme laminaire en fonction de la richesse sans et avec AEQS. . . . .	111
8.8	Profils des variables d'intérêt dans une flamme de prémélange sans et avec AEQS en fonction de la richesse. . . . .	113
9.1	Champs moyens des trois composantes de la vitesse dans le plan médian de la chambre de combustion et iso-lignes de vitesse axiale nulle. . . . .	116
9.2	Lignes de courant de l'écoulement moyen. . . . .	117
9.3	Champ moyen de température dans la chambre de combustion, iso-lignes de vitesse axiale nulle, de richesse $\phi = 1$ et de taux de consommation d'éthylène $\dot{\omega}_{C_2H_4} = -15 \text{ kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$ . . . . .	118
9.4	Champ moyen de richesse dans le plan médian de la chambre de combustion, iso-lignes de vitesse axiale nulle et de taux de consommation d'éthylène $\dot{\omega}_{C_2H_4} = -15 \text{ kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$ . . . . .	119
9.5	Population de l'espace température moyenne - richesse locale moyenne dans la chambre de combustion et limites physiques. . . . .	120
9.6	Distribution du taux de dégagement de chaleur moyen dans la chambre de combustion en fonction de la richesse locale moyenne, colorée selon le régime de combustion. . . . .	121
9.7	Distribution du taux de nucléation de suie moyen dans la chambre de combustion en fonction de la richesse locale moyenne, colorée selon le régime de combustion. . . . .	121
9.8	Champs moyens de fraction volumique de suie et de diamètre $d_{10}$ des particules dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	123
9.9	Champs moyens des taux d'évolution ( $\dot{\phi}$ ) des particules dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	124

---

9.10	Distributions en taille instantanées des particules dans dix tranches de la chambre de combustion définies en fonction de la hauteur au-dessus du fond de chambre. . . . .	126
9.11	Profils radiaux des trois composantes de la vitesse moyenne et RMS dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond. . . . .	129
9.12	Profils radiaux de températures moyenne et RMS dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond. . . . .	131
9.13	Profils de températures moyenne et RMS sur l'axe de la chambre de combustion en fonction de la hauteur au-dessus de son fond. . . . .	131
9.14	Champs moyens de fraction massique et de fluorescence du radical OH dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	132
9.15	Champs moyens de fraction massique et de fluorescence de PAH <sub>0</sub> dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	133
9.16	Champ moyen de fraction volumique de suie dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	134
9.17	Profils radiaux de fraction volumique de suie moyenne dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond. . . . .	134
9.18	Champ de puissance radiative moyenne dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	137
9.19	Champs de flux radiatif et convectif moyens sur les parois latérales de la chambre de combustion. . . . .	138
9.20	Champ de flux moyen absorbé par les parois latérales de la chambre de combustion pour le cas (AG+S+AL). . . . .	139
B.1	Champs moyens des taux de condensation ( $\dot{\varphi}$ ) des PAH <sup>(*)</sup> sur les particules dans le plan médian de la chambre de combustion. . . . .	178



---

# Introduction

---

Les particules de suie, produits de la combustion incomplète des hydrocarbures dans les moteurs thermiques en général et aéronautiques en particulier, représentent un ensemble d'enjeux d'importance croissante dans la conception des chambres de combustion aéronautiques. Le premier, sanitaire et environnemental, est global [55, 56]. Les suies contribuent en effet à la dégradation de la qualité de l'air à proximité des aéroports et au développement d'affections pulmonaires. Elles ont également un impact sur le réchauffement climatique, directement par absorption du rayonnement solaire et indirectement par initiation de traînées de condensation augmentant l'effet de serre. C'est d'ailleurs pour cette raison que les standards de certification des moteurs aéronautiques sont en cours de durcissement. Le CAEP (*Committee on Aviation Environmental Protection*) de l'Organisation de l'Aviation Civile Internationale devrait ainsi introduire un nouveau standard CAEP/11 sur les *nvPM* (*non-volatile Particulate Matter*) en 2020 [55, 56]. Le deuxième enjeu est restreint, en partie, à la chambre de combustion. Les propriétés radiatives des particules de suie y modifient en effet le champ de température, ce qui peut affecter la dynamique de la flamme et/ou modifier les émissions d'autres polluants comme les oxydes d'azote, particulièrement sensibles à la température [20]. La charge thermique aux parois de la chambre et à l'entrée de la turbine, liée notamment au rayonnement des suies, sont également un critère de conception pour les industriels du secteur aéronautique.

Afin d'inclure ces problématiques dans le processus de conception de leurs moteurs, les industriels du secteur aéronautique ont de plus en plus recours à la simulation numérique, la production de prototypes et les campagnes d'essai – longtemps inévitables – étant très coûteuses. Les outils de simulation se doivent donc d'évoluer pour prendre en compte tous les phénomènes multiphysiques rencontrés dans les chambres de combustion et leur couplage : l'aérodynamique de l'écoulement gazeux, l'atomisation du jet de carburant, la combustion, les films de refroidissement, ou encore les transferts de chaleur. Ces outils doivent en particulier être capables de décrire la formation et l'évolution des polluants tels que les suies, pour les caractériser d'abord et réduire leurs niveaux par l'intermédiaire d'adaptations technologiques ensuite.

## Formation et évolution des particules de suie

La formation des particules de suie, appelée nucléation, est généralement associée à la croissance de précurseurs aromatiques gazeux ou PAH (*Polycyclic Aromatic Hydrocarbons*). Les molécules légères, telles que l'acétylène  $C_2H_2$  et le benzène  $C_6H_6$  produits par pyrolyse d'un hydrocarbure, s'assemblent successivement pour donner naissance à des molécules planes toujours plus grandes, les PAH, comme le pyrène  $C_{16}H_{20}$ . Ce processus de croissance est décrit dans la littérature par le mécanisme d'abstraction d'hydrogène et d'addition d'acétylène ou HACA (*H-Abstraction-C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>-Addition*), proposé par Frenklach et Wang [34] et largement admis. Le lecteur intéressé pourra en trouver une illustration détaillée dans [34], ainsi que dans les thèses de Dorey [20] et Rodrigues [90] entre autres. Les PAH sont assimilés à des particules de suie naissantes dès que leur taille dépasse l'ordre du nanomètre. En

pratique, la transition entre PAH et suie est modélisée par la dimérisation d'un ou plusieurs PAH de grande taille [75, 90], i.e. la collision de deux molécules identiques ou plus généralement la collision de deux molécules ou radicaux dans les mécanismes DLR [23] et CRECK [92]. La nucléation peut aussi être reliée directement à la présence d'acétylène, notamment dans le modèle de Leung [67] antérieur au mécanisme HACA, ou corrélée à la présence de combustible [72].

Les particules de suie formées évoluent ensuite par interaction avec le gaz porteur, selon quatre mécanismes en compétition identifiés dans la littérature :

- la croissance en surface par le mécanisme HACA en présence d'hydrogène, qui conduit à une augmentation de la masse des particules,
- l'oxydation par  $O_2$ , généralement intégrée au mécanisme HACA, qui conduit à une réduction de la masse des particules et éventuellement à la fragmentation des agrégats de sphérules,
- l'oxydation par OH, modélisée par Neoh [78], qui conduit également à une réduction de la masse des particules
- et la condensation des PAH à leur surface, qui conduit à une augmentation de leur masse.

Les particules interagissent aussi entre elles selon deux régimes : la coalescence donne naissance à une unique particule sphérique de grande taille à partir de deux sphérules, et l'agrégation à des assemblages de sphérules (*cf.* Figure 4.1).

Le lecteur intéressé trouvera plus de détails sur la phénoménologie de la formation et de l'évolution des particules de suie dans les travaux de Dorey [20] et Rodrigues [90]. Les interactions entre particules feront l'objet d'une explication ponctuelle dans la suite de ce mémoire pour clarifier la démarche de modélisation suivie. À ce stade, on notera seulement que deux problématiques majeures émergent des processus introduits, à savoir la description de la formation des précurseurs gazeux et la modélisation de l'évolution des particules, et ce dans le cadre de simulations numériques de complexité industrielle.

## Méthodes numériques pour la modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie

La description de la formation des précurseurs gazeux, qu'il s'agisse de l'acétylène pour le modèle de Leung ou de PAH pour des modèles plus détaillés, requiert la mise en œuvre de schémas cinétiques complexes. Ces schémas contiennent généralement plusieurs dizaines d'espèces chimiques et centaines de réactions [107]. De fait, ils donnent lieu à des temps de calcul élevés et potentiellement incompatibles avec les temps de restitution accessibles aux industriels. Jusqu'à présent, la méthodologie adoptée à l'ONERA pour traiter ce problème a été double. La première a été de se limiter à des cinétiques globales, avec seulement quelques espèces et réactions, pour la prédiction de la concentration des principaux produits de combustion [20]. La modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie, contrainte par les espèces disponibles, n'était toutefois pas détaillée, le modèle empirique de Tesner-Magnussen [72] étant utilisé. La deuxième approche a été d'appliquer une méthode de tabulation de cinétique chimique [8], ce qui autorise la prise en compte de mécanismes détaillés, incluant l'acétylène par exemple, en ne résolvant qu'un nombre réduit d'équations de transport. Le modèle de Leung [67], pour lequel la nucléation est corrélée à la présence de  $C_2H_2$ , a ainsi pu être utilisé. Des modèles de nucléation par dimérisation de PAH seraient également envisageables, comme dans les travaux récents de Rodrigues [90]. Néanmoins, les méthodes de tabulation, présentées sommairement dans la suite, sont limitées par les hypothèses de génération des tables. Aussi, leur complexité, donc leur coût, croient dès lors que les pertes thermiques ou le caractère multiphasique [29, 30] de l'écoulement dans la chambre de combustion doivent être considérés. C'est pour ces raisons que l'approche retenue dans les présents travaux repose sur l'utilisation de cinétiques chimiques détaillées, réduites sur une gamme de points de fonctionnement d'intérêt pour lesquels un ensemble d'espèces et de réactions sont supprimées ou mises à l'équilibre si elles ont une contribution minoritaire à la chimie de l'écoulement.

---

Une telle approche a été appliquée par Felden [28], combinée au modèle de Leung, et a montré l'amélioration de la prédiction de la structure de flamme par rapport à une méthode de tabulation. Zamuner et Dupoirieux [114], ainsi que Eberle et al. [23], ont également utilisé avec succès une cinétique chimique réduite, associée à une méthode sectionnelle pour représenter la croissance des PAH et la nucléation des suies.

Un état de l'art des méthodes numériques pour la modélisation de l'évolution des particules de suie, que reprend ce paragraphe, est présenté dans les travaux de Dorey [20] et Rodrigues [90]. Trois familles de modèles sont communément distinguées :

- **Modèles empiriques** : Les modèles empiriques reposent sur des corrélations extraites de mesures expérimentales. Deux équations sont généralement résolues pour la fraction volumique ou massique de suie et le nombre de particules ou de noyaux intermédiaires de nucléation par unité de volume, en fonction de la concentration de combustible et d'oxydant uniquement. Ces modèles, comme celui de Tessner-Magnussen [72] déjà évoqué ou de Moss [74], sont compatibles avec des cinétiques chimiques globales peu coûteuses. Attractifs pour des applications industrielles, ils sont néanmoins peu prédictifs – car optimisés pour des configurations particulières – et ne donnent pas accès à la distribution en taille des particules ou à leur changement de morphologie.
- **Modèles semi-empiriques** : Les modèles semi-empiriques, tel que celui de Leung [67], reposent sur une description simple de la physique des particules de suie. Deux équations sont généralement résolues pour la fraction volumique ou massique de suie et le nombre de particules par unité de volume. Leurs termes source de nucléation, de croissance et d'oxydation sont obtenus comme pour un mécanisme réactionnel, en fonction de constantes cinétiques ajustées sur des mesures expérimentales, et un terme source lié aux collisions peut être ajouté. La nucléation est communément basée sur la concentration de précurseurs gazeux, l'acétylène ou un ensemble de PAH (cf. le paragraphe précédent). Ces modèles sont plus prédictifs que les modèles empiriques, même si les constantes cinétiques peuvent être adaptées aux configurations à traiter. Néanmoins ils ne permettent pas, en général, d'accéder à la distribution en taille des particules ou à leur changement de morphologie. On notera que Franzelli et al. [31], comme Zamuner et Dupoirieux [114] auparavant, ont récemment proposé l'ajout d'une équation pour la surface totale des particules, autorisant le suivi du changement de morphologie, ainsi qu'une méthode de reconstruction a priori de la distribution en taille. Ce modèle avancé à trois équations tend à se rapprocher d'un modèle détaillé par construction, tout en maintenant un coût proche de celui des modèles semi-empiriques classiques.
- **Modèles détaillés** : Les modèles détaillés, généralement combinés à une description de la nucléation par la dimérisation ou la croissance de PAH, reposent sur la résolution de l'évolution temporelle de la distribution en taille des particules. Trois classes de méthodes existent : les méthodes des moments, les méthodes sectionnelles et les méthodes stochastiques.

Dans les méthodes de moments, seuls les moments statistiques de la distribution en taille des particules sont calculés, la moyenne et l'écart-type par exemple. Les termes source de chacun d'eux incluent les contributions des processus de croissance, condensation, oxydation et collisions mentionnés précédemment. Ces méthodes donnent la possibilité de décrire la formation d'agrégats dès lors que la formulation mise en œuvre intègre au moins le volume et la surface des particules [75]. Néanmoins, la résolution de la distribution complète étant impossible, le nombre de moments calculés est limité et des hypothèses de fermeture fortes sont appliquées pour les moments d'ordre élevé. Le lecteur intéressé en trouvera un inventaire dans les travaux de Rodrigues. On ne citera que la méthode HMOM (Hybrid Method Of Moments) de Mueller et Blanquart [75], très utilisée car peu coûteuse mais ne donnant qu'un accès incomplet à la distribution en taille des particules.

Dans les méthodes sectionnelles, la distribution en taille des particules est communément discrétisée en sections dans l'espace des volumes, caractérisées par une ou plusieurs variables transpor-

tées, comme la fraction volumique [90], dont les termes source intègrent à nouveau les processus de croissance, condensation, oxydation et collisions mentionnés précédemment. Une variante consiste à définir des sections dans l'espace des masses molaires [23, 88, 92] afin de les transporter telles des espèces chimiques avec un mécanisme réactionnel propre incluant aussi tous les phénomènes d'évolution des suies. D'autres variantes à sections *mobiles* ou *multivariables* existent dans la littérature. Le lecteur intéressé pourra consulter les travaux de Dorey [20] et les références qui s'y trouvent citées pour plus de détails. Les méthodes sectionnelles donnent par construction accès à la distribution en taille des particules et la possibilité de décrire la formation d'agrégats [24, 90, 92]. Néanmoins, le nombre de sections nécessaire est usuellement supérieur à 20, ce qui en fait des méthodes particulièrement coûteuses.

Dans les méthodes stochastiques, l'équation d'évolution d'une population de particules est résolue par une méthode de Monte-Carlo, sans hypothèse préalable sur la distribution en taille des particules, tout en prenant en compte l'ensemble des phénomènes propres aux suies. Ces méthodes donnent accès à la distribution en taille exacte et la possibilité de décrire les changements de morphologie des particules si la formulation utilisée intègre l'évolution de leur volume et de leur surface [114]. Néanmoins, la convergence d'une méthode de Monte-Carlo étant inversement proportionnelle à la racine carrée du nombre de particules considérées, ces méthodes stochastiques sont très coûteuses et usuellement limitées au post-traitement de calcul d'écoulements réactifs [2, 114]. Les calculs couplés rencontrés dans la littérature sont restreints à des cas académiques de réacteurs homogènes ou de flammes monodimensionnelles [13, 114].

Dans le présent travail de thèse, une caractérisation détaillée des particules de suie est visée. Une nouvelle méthode de suivi de particules en approche lagrangienne, communément utilisée pour la simulation de spray liquide [8, 20], est ainsi développée dans le code de simulation d'écoulements compressibles réactifs CEDRE de l'ONERA. Les particules de suie, formées par nucléation, y sont suivies le long de leurs trajectoires, elles interagissent à la fois avec la phase gazeuse par les processus de croissance en surface, d'oxydation ou de condensation et les autres particules par collision. Contrairement aux méthodes de moments et sectionnelles, cette méthode autorise la description de la distribution en taille des particules sans hypothèse ou discrétisation préalable. Son coût, proportionnel au nombre de particules suivies nécessaire à sa convergence statistique, est potentiellement prohibitif, ce qui nécessite des mesures particulières lors de son implémentation. On notera que, parallèlement à ces travaux, cette méthode a commencé à émerger sous le nom de *Lagrangian Soot Tracking*. Gallen et al. [38] ont ainsi proposé pour des applications similaires une formulation du modèle de Leung en approche lagrangienne, semble t'il<sup>1</sup> sans rétroaction des particules de suie sur le gaz. De même, Ong et al. [80] ont développé un modèle de suie en approche lagrangienne pour la simulation de moteurs Diesel avec l'acétylène comme seul précurseur gazeux, a priori sans rétroaction des particules sur le gaz ni modélisation des interactions entre particules. Comme détaillé dans la suite, les choix faits dans le présent travail sont différents. La nucléation sera en effet décrite par la croissance de PAH, et les interactions entre particules ainsi que leur rétroaction sur le gaz seront prises en compte. On signalera aussi que ces travaux se distinguent de ceux de Attili et Bisetti [1] proposant une implémentation en approche lagrangienne de la méthode des moments. Les travaux antérieurs sur la méthode *Lagrangian Soot Tracking* mentionnés par Ong et al. [80] pour les moteurs Diesel ou des configurations de flammes académiques sont eux très éloignés des problématiques actuelles, l'injection et la suppression des particules y étant non physiques et les particules, utilisées comme traceur, suivies sans modélisation ou en limitant celle-ci à leur chauffage.

## Démarche

L'objectif de ce travail de thèse est de développer une méthode couplée Euler-Lagrange pour la modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie dans le code CEDRE de l'ONERA.

---

1. Il n'est pas fait mention de la rétroaction des particules sur le gaz dans les publications.

---

La méthode eulérienne, classique en mécanique des fluides numérique, se rapporte à la description de l'écoulement et de sa chimie, ce qui inclut la cinétique de croissance des précurseurs gazeux donnant naissance aux particules de suie. Elle sera traitée par le solveur CHARME du code CEDRE, chargé de résoudre les équations de Navier-Stokes pour un écoulement compressible multi-espèce et réactif. La méthode lagrangienne se rapporte, elle, au suivi des particules de suie, constituant la phase particulaire, dans l'écoulement gazeux ou phase gazeuse, et à la modélisation des interactions entre ces deux phases ainsi qu'entre les particules. Elle sera traitée par le solveur SPARTE du code CEDRE. L'application visée est la configuration FIRST du DLR dont la chambre de combustion  $C_2H_4$ /air est représentative des technologies aéronautiques (injection swirlée, structure de l'écoulement, air injecté en aval de l'injection primaire). Sa simulation LES (*Large Eddy Simulation*) constituera en effet une première étape, nécessaire, vers l'application de la méthode couplée Euler-Lagrange à des foyers aéronautiques kérosène/air.

Sont présentés dans le chapitre 1 les modèles et méthodes numériques pour la simulation d'écoulements gaz-particules dans les solveurs CHARME et SPARTE du code CEDRE. La modélisation de la combustion y est en particulier introduite plus largement afin de donner au lecteur les éléments utiles à la compréhension des chapitres 7 à 9. Le cadre dans lequel s'insèrent les développements des chapitres 2 à 5 est également défini.

La première partie se concentre sur le développement, dans le code CEDRE, d'un modèle de particules de suie sphériques en approche lagrangienne. Les chapitres 2, 3 et 4 sont respectivement consacrés à la nucléation, à l'évolution des particules induite par des processus chimiques et aux interactions entre particules. Les modèles et méthodes numériques mis en place pour les suies dans ce travail de thèse y sont présentés en détail et leur comportement illustré au besoin sur des cas-tests 0D et 1D. On notera que le chapitre 4 introduit également les avancées réalisées sur la prise en compte de l'agrégation de particules sphériques et la formation d'agrégats fractals dans le solveur SPARTE. Le chapitre 5 présente l'algorithme de réduction de population de sphérules développé pour limiter le coût CPU de l'approche lagrangienne sans en dégrader significativement la capacité à décrire la distribution en taille des particules. Le chapitre 6 est dédié à la validation de la méthode couplée Euler-Lagrange sur un cas de flamme stationnaire de prémélange 1D  $C_2H_4$ /air à richesses élevées. Les travaux présentés dans ce chapitre ont fait l'objet d'une publication soumise à *Energy* disponible en annexe A.

La seconde partie se concentre sur l'application de la méthode couplée Euler-Lagrange à la configuration FIRST du DLR. Le chapitre 7 est ainsi consacré à la présentation de la configuration, du point de fonctionnement étudié et des mesures expérimentales disponibles. Il est complété d'une revue des simulations existant dans la littérature afin de permettre au lecteur de situer ces travaux. Le chapitre 8 présente la modélisation et les méthodes numériques spécifiques adoptées. Le chapitre 9 propose une analyse de la simulation réalisée portant sur les caractéristiques globales de l'écoulement et des particules de suie, ainsi que sur la comparaison avec les mesures expérimentales. L'analyse est enfin complétée par un calcul de transferts radiatifs en post-traitement pour évaluer l'impact du rayonnement sur l'écoulement et la charge thermique pariétale.



---

## Chapitre 1

# Modèles et méthodes numériques pour la simulation d'écoulements gaz-particules dans le code CEDRE

---

L'objectif de ce chapitre est d'introduire les principes fondamentaux de la simulation d'écoulements gaz-particules dans le code CEDRE. Pour cela, on présente tout d'abord les équations de l'aérothermochimie pour la description des écoulements compressibles multi-espèces réactifs dans le solveur CHARME. On s'intéresse aussi à la modélisation de la turbulence et de la combustion, ainsi qu'aux méthodes numériques de résolution des équations de conservation définies. On introduit ensuite l'équation de Williams-Boltzmann pour la description statistique de la phase particulaire et la méthode lagrangienne de résolution de cette équation dans le solveur SPARTE. On définit enfin le schéma de couplage des deux solveurs au sein de CEDRE.

### Sommaire

---

1.1	Description eulérienne de la phase gazeuse . . . . .	8
1.1.1	Équations de Navier-Stokes d'un écoulement compressible multi-espèce réactif . . . . .	8
1.1.2	Modélisation de la turbulence . . . . .	11
1.1.3	Modélisation de la combustion . . . . .	14
1.1.4	Méthodes numériques du solveur CHARME . . . . .	17
1.2	Description lagrangienne de la phase particulaire . . . . .	19
1.2.1	Équation de Williams-Boltzmann . . . . .	19
1.2.2	Méthodes numériques du solveur SPARTE . . . . .	20
1.2.3	Rétroaction des particules sur la phase gazeuse . . . . .	21
1.2.4	Définition des diamètres statistiques . . . . .	22
1.3	Couplage des solveurs CHARME et SPARTE . . . . .	22

---

Dans ce travail de thèse, les simulations d'écoulements compressibles réactifs seront toutes réalisées avec le code CEDRE [86], développé à l'ONERA. La phase gazeuse et les particules de suie seront traitées par deux solveurs, respectivement le solveur eulérien CHARME et le solveur lagrangien SPARTE.

## 1.1 Description eulérienne de la phase gazeuse

### 1.1.1 Équations de Navier-Stokes d'un écoulement compressible multi-espèce réactif

On considère un mélange de  $N$  espèces gazeuses. Son écoulement est décrit par les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie totale.

#### Conservation de la masse

Pour chaque espèce  $X_k$ , l'équation de conservation de la masse s'écrit :

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho Y_k \mathbf{V}) = -\nabla \cdot \mathbf{J}_k + \dot{\omega}_k, \quad (1.1)$$

où  $t$  est le temps,  $\rho$  la masse volumique du mélange,  $Y_k$  la fraction massique de l'espèce et  $\mathbf{V}$  le vecteur vitesse.  $\dot{\omega}_k$  est le terme source de masse de l'espèce  $X_k$  lié aux réactions chimiques en phase gazeuse.

#### Loi de diffusion des espèces et coefficients phénoménologiques usuels

$\mathbf{J}_k$  est le flux de diffusion moléculaire de l'espèce  $X_k$ , calculé à l'aide de l'équation (1.2) [94] :

$$\mathbf{J}_k = \rho \mathcal{V}_k Y_k = -\rho (D_k \nabla Y_k + \mathcal{V}_{cf} Y_k), \quad (1.2)$$

avec  $\mathcal{V}_k$  la vitesse de diffusion de l'espèce  $X_k$  et  $D_k$  son coefficient de diffusion moyenné.  $\mathcal{V}_{cf}$  est une vitesse corrective garantissant la nullité de la somme des flux de diffusion moléculaire et la conservation globale de la masse :

$$\mathcal{V}_{cf} = \sum_{k=1}^N D_k \nabla Y_k. \quad (1.3)$$

$D_k$  est déterminé en fonction de la masse volumique, de la viscosité du mélange  $\mu$  et du nombre de Schmidt  $Sc_k$  de l'espèce  $X_k$  :

$$D_k = \frac{\mu}{\rho Sc_k}, \quad (1.4)$$

avec  $Sc_k$  constant.

On notera que l'effet Soret de diffusion des espèces sous l'effet des gradients de température est négligé dans l'équation (1.2).

#### Conservation de la quantité de mouvement

L'équation de conservation de la quantité de mouvement s'écrit :

$$\frac{\partial \rho \mathbf{V}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{V} \otimes \mathbf{V}) = \nabla \cdot (\boldsymbol{\tau} - p \mathbf{I}), \quad (1.5)$$

où  $p$  est la pression et  $\mathbf{I}$  la matrice identité.

**Loi de diffusion de la quantité de mouvement et coefficients phénoménologiques usuels**

$\boldsymbol{\tau}$  est le tenseur des contraintes visqueuses, calculé pour les fluides newtoniens considérés dans ce travail par l'équation (1.6) :

$$\boldsymbol{\tau} = \mu [\nabla\mathbf{V} + (\nabla\mathbf{V})^T] + \left(\kappa - \frac{2}{3}\mu\right) (\nabla \cdot \mathbf{V}) \mathbf{I}, \quad (1.6)$$

où  $\kappa$  est la viscosité en volume (ou *bulk viscosity*), supposée négligeable.  $\mu$  est déterminée comme la moyenne arithmétique de la viscosité des espèces pondérée par leur fraction massique :

$$\mu = \sum_{k=1}^N \mu_k Y_k, \quad (1.7)$$

avec  $\mu_k$  la viscosité de l'espèce  $\mathcal{X}_k$  calculée en fonction de la température  $T$  du mélange par une loi de Sutherland [99] :

$$\mu_k = \mu_k^* \left(\frac{T}{T_k^*}\right)^{3/2} \frac{T^* + S_k}{T + S_k}. \quad (1.8)$$

La température  $T_k^*$ , la viscosité  $\mu_k^*$  à  $T_k^*$  et la température de Sutherland  $S_k$ , toutes propres à l'espèce  $\mathcal{X}_k$ , sont constantes.

**Conservation de l'énergie totale**

L'énergie totale est définie par l'équation (1.9), avec  $T_0 (= 298,15 \text{ K})$  la température de référence,  $c_v$  la capacité calorifique massique à volume constant du mélange,  $\mathcal{M}$  sa masse molaire et  $\Delta h_{f,k}^0$  l'enthalpie de formation massique de l'espèce  $\mathcal{X}_k$  à  $T_0$  :

$$e_t = \underbrace{\sum_{k=1}^N \Delta h_{f,k}^0 Y_k}_{\text{Énergie chimique}} + \overbrace{\int_{T_0}^T c_v dT - \frac{\mathcal{R}T_0}{\mathcal{M}} + \frac{1}{2} \mathbf{V} \cdot \mathbf{V}}^{\text{Énergie sensible}} \quad (1.9)$$

Énergie cinétique

$\mathcal{R}$  est la constante universelle des gaz parfaits égale à  $8,314\,462\,1 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . L'équation de conservation de l'énergie totale s'écrit :

$$\frac{\partial \rho e_t}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho e_t \mathbf{V}) = -\nabla \cdot \left( \mathbf{J}_c + \sum_{k=1}^N h_k \mathbf{J}_k \right) + \nabla \cdot [(\boldsymbol{\tau} - p\mathbf{I}) \mathbf{V}], \quad (1.10)$$

où  $h_k$  est l'enthalpie massique de l'espèce  $\mathcal{X}_k$ .

**Loi de diffusion de la chaleur et coefficients phénoménologiques usuels**

$\mathbf{J}_c$  est le flux de diffusion moléculaire de la chaleur, calculé par la loi de Fourier (1.11) :

$$\mathbf{J}_c = -\lambda \nabla T, \quad (1.11)$$

où  $\lambda$  est la conductivité thermique du mélange.  $\lambda$  est déterminée comme la moyenne arithmétique

de la conductivité des espèces pondérée par leur fraction massique et leur viscosité :

$$\frac{\lambda}{\mu} = \sum_{k=1}^N \frac{\lambda_k}{\mu_k} Y_k. \quad (1.12)$$

$\lambda_k$  est la conductivité thermique de l'espèce  $X_k$  calculée en fonction de  $c_{p,k}$  sa capacité calorifique massique à pression constante et de  $M_k$  sa masse molaire selon l'approximation d'Eucken :

$$\lambda_k = \mu_k c_{p,k} + \frac{5\mathcal{R}}{4M_k}. \quad (1.13)$$

$c_{p,k}$  est évaluée par une fonction polynomiale de  $T$  ou multi-polynomiale dans la norme NASA [73].  $h_k$  à la température  $T$  est déduit par intégration de  $c_{p,k}$  de  $T_0$  à  $T$ .

On notera que l'effet Dufour de diffusion de la chaleur sous l'effet des gradients de concentration des espèces est négligé dans l'équation (1.11).

### Fermeture thermodynamique

Dans la suite, les vecteurs des quantités conservées et des variables naturelles sont respectivement notées  $\mathbf{q}$  et  $\mathbf{u}$  :

$$\mathbf{q} = \begin{pmatrix} \rho Y_1 \\ \vdots \\ \rho Y_N \\ \rho V_x \\ \rho V_y \\ \rho V_z \\ \rho e_t \end{pmatrix}, \quad \mathbf{u} = \begin{pmatrix} p \\ T \\ V_x \\ V_y \\ V_z \\ Y_1 \\ \vdots \\ Y_N \end{pmatrix}, \quad (1.14)$$

La fermeture thermodynamique des équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie totale est assurée par l'équation d'état des gaz parfaits (1.15) :

$$p = \rho \frac{\mathcal{R}}{M} T, \quad (1.15)$$

ce qui permet d'effectuer les changements de variable  $\mathbf{q}(\mathbf{u}) \leftrightarrow \mathbf{u}(\mathbf{q})$  nécessaires au calcul des coefficients phénoménologiques, des termes sources et des flux déjà définis. On ajoute que la masse molaire et la capacité calorifique massique à volume constant ou à pression constante  $c_p$  du mélange sont pour cela déterminées par les équations (1.16) à (1.18) :

$$\frac{1}{M} = \sum_{k=1}^N \frac{Y_k}{M_k}, \quad (1.16)$$

$$c_p = \sum_{k=1}^N c_{p,k} Y_k, \quad (1.17)$$

$$c_v = c_p - \frac{\mathcal{R}}{M}, \quad (1.18)$$

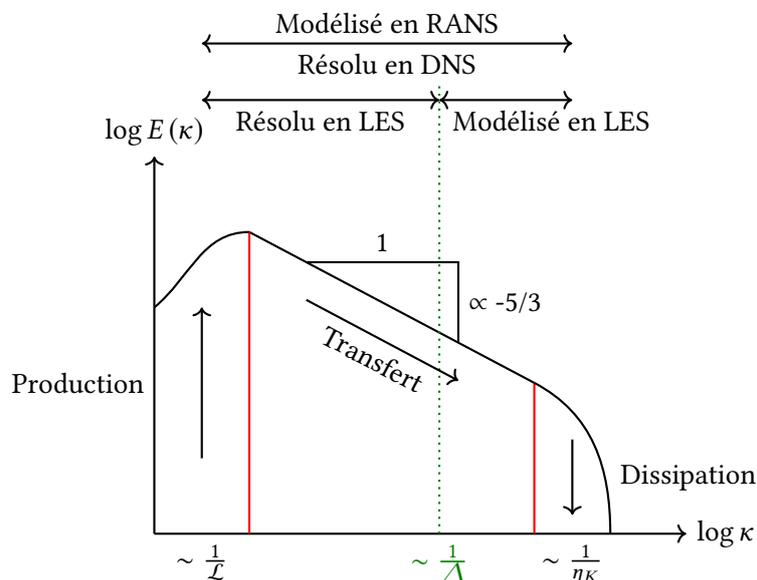
avec par définition,

$$\sum_{k=1}^N Y_k = 1. \quad (1.19)$$

### 1.1.2 Modélisation de la turbulence

Les écoulements turbulents sont caractérisés par la fluctuation aléatoire des quantités conservées et des variables naturelles à des échelles spatiales et temporelles multiples. Dans la théorie de la cascade énergétique de Richardson [87] et Kolmogorov [58], trois zones sont identifiées, dans l'espace spectral, pour différencier les échelles des tourbillons mises en jeu, comme présenté sur la figure 1.1 :

- L'énergie cinétique turbulente  $k$  est produite aux grandes échelles, i.e. à faible nombre d'onde  $\kappa$ , par l'écoulement moyen dans la zone de production. Les gros tourbillons y ont une taille  $\mathcal{L}$  liée à la taille de la géométrie, appelée échelle intégrale.
- L'énergie est transférée sans perte vers les plus petites échelles dans la zone inertielle, avec une décroissance de la densité spectrale d'énergie  $E$  en  $\kappa^{-5/3}$ ,  $\kappa$  étant le nombre d'onde.
- L'énergie est dissipée dans la zone dissipative sous forme de chaleur par les plus petits tourbillons de taille  $\eta_K$ , appelée échelle de Kolmogorov.



**FIGURE 1.1 – Illustration de la théorie de la cascade énergétique de Richardson et Kolmogorov dans l'espace spectral [62].**

Pour modéliser la turbulence, trois approches numériques, illustrées sur la figure 1.1, sont possibles :

1. **DNS** (*Direct Numerical Simulation*) : toutes les échelles sont résolues, ce qui peut être coûteux en terme de discrétisations spatiale et temporelle pour des configurations de complexité industrielle.
2. **LES** (*Large Eddy Simulation*) : seules les échelles entre l'échelle intégrale et l'échelle de coupure  $1/\Delta$  sont résolues par application d'un filtre passe-bas dans l'espace spectral, ou passe-haut dans l'espace physique avec une échelle de coupure  $\Delta$ . L'influence des échelles de sous-maille, i.e. sous l'échelle de coupure dans l'espace spectral, sur les échelles résolues est, elle, modélisée.
3. **RANS** (*Reynolds Averaged Navier-Stokes*) : toutes les échelles sont modélisées, ce qui ne permet d'accéder qu'aux grandeurs moyennes de l'écoulement.

Dans la suite, on se concentre sur la modélisation LES, utilisée dans le chapitre 9. Le lecteur intéressé est invité à consulter les ouvrages de référence de Pope [85] et Lesieur et al. [65] pour plus de détails sur la phénoménologie et la modélisation de la turbulence.

### Filtrage des équations de Navier-Stokes

En LES, chaque grandeur  $\varphi$  est décomposée en une partie résolue  $\bar{\varphi}$  et une partie de sous-maille  $\varphi'$  :

$$\varphi = \bar{\varphi} + \varphi'. \quad (1.20)$$

$\bar{\varphi}$  est déterminée par filtrage passe-bas de la grandeur  $\varphi$  dans l'espace spectral :

$$\bar{\varphi}(\kappa) = \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(\kappa') G_{\Delta}(\kappa - \kappa') d\kappa', \quad (1.21)$$

où  $G_{\Delta}$  est le noyau de convolution du filtre passe-bas d'échelle de coupure  $\Delta$  dans l'espace physique, liée à la taille des mailles dans CEDRE. La décomposition (1.20), appelée décomposition de Reynolds, a l'inconvénient de faire apparaître des corrélations difficiles à fermer dans les équations de conservation de la masse si la masse volumique est variable. C'est pour cette raison que la décomposition de Favre lui est préférée. Une grandeur  $\varphi$  est alors décomposée en une moyenne pondérée par la masse volumique  $\tilde{\varphi}$  et une fluctuation de sous-maille  $\varphi''$  :

$$\varphi = \tilde{\varphi} + \varphi'', \quad (1.22)$$

avec

$$\tilde{\varphi} = \frac{\overline{\rho\varphi}}{\bar{\rho}}. \quad (1.23)$$

La moyenne temporelle d'une grandeur  $\varphi$  est donnée par l'équation (1.24) :

$$\langle \varphi \rangle = \langle \tilde{\varphi} \rangle + \langle \varphi'' \rangle. \quad (1.24)$$

La contribution de la partie de sous-maille à  $\langle \varphi \rangle$  est généralement faible devant celle de la partie résolue, ainsi  $\langle \varphi \rangle \simeq \langle \tilde{\varphi} \rangle = \varphi_{\text{avg}}$ . De même, la RMS (*Root Mean Square*) des fluctuations, utile à la confrontation entre simulation numérique et mesures expérimentales, est calculée par l'équation (1.25) :

$$\varphi_{\text{RMS}} = \sqrt{\langle \varphi^2 \rangle - \langle \varphi \rangle^2} \simeq \sqrt{\langle \tilde{\varphi}^2 \rangle - \langle \tilde{\varphi} \rangle^2}, \quad (1.25)$$

en négligeant les contributions de la partie de sous-maille devant celles de la partie résolue.

Les équations de Navier-Stokes filtrées sont dérivées par application du filtre  $\overline{(\cdot)}$  aux équations (1.1), (1.5) et (1.10) et de la décomposition de Favre à chaque variable :

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{Y}_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \tilde{Y}_k \tilde{\mathbf{V}}) = -\nabla \cdot \bar{\mathbf{J}}_k + \bar{\omega}_k - \nabla \cdot \mathbf{J}_k^t, \quad (1.26)$$

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{\mathbf{V}}}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \tilde{\mathbf{V}} \otimes \tilde{\mathbf{V}}) = \nabla \cdot (\bar{\boldsymbol{\tau}} - \bar{\rho} \mathbf{I}) + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}^t, \quad (1.27)$$

$$\frac{\partial \bar{\rho} \tilde{e}_t}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\rho} \tilde{e}_t \tilde{\mathbf{V}}) = -\nabla \cdot \left( \bar{\mathbf{J}}_c + \sum_{k=1}^N \bar{h}_k \bar{\mathbf{J}}_k \right) + \nabla \cdot [(\bar{\boldsymbol{\tau}} - \bar{\rho} \mathbf{I}) \tilde{\mathbf{V}}] - \nabla \cdot \mathbf{J}_{e_t}^t, \quad (1.28)$$

où  $\mathbf{J}_k^t$  et  $\mathbf{J}_{e_t}^t$  sont les flux de diffusion turbulente respectivement des espèces et de l'énergie totale, et  $\boldsymbol{\tau}^t$  le tenseur des contraintes turbulentes, tous les trois à fermer.

Les flux laminaires et le tenseur des contraintes visqueuses sont évalués en fonction des grandeurs résolues, en négligeant les corrélations éventuelles entre les variables :

$$\bar{\mathbf{J}}_k = -\overline{\rho \left( D_k \nabla Y_k + \sum_{k=1}^N D_k Y_k \nabla Y_k \right)} \simeq -\bar{\rho} \left( D_k \nabla \tilde{Y}_k + \sum_{k=1}^N D_k \tilde{Y}_k \nabla \tilde{Y}_k \right), \quad (1.29)$$

$$\overline{\boldsymbol{\tau}} = \mu \left[ \nabla \mathbf{V} + (\nabla \mathbf{V})^T \right] - \frac{2}{3} \mu (\nabla \cdot \mathbf{V}) \mathbf{I} \simeq \mu \left[ \nabla \tilde{\mathbf{V}} + (\nabla \tilde{\mathbf{V}})^T \right] - \frac{2}{3} \mu (\nabla \cdot \tilde{\mathbf{V}}) \mathbf{I}, \quad (1.30)$$

$$\overline{\mathbf{J}_c} + \sum_{k=1}^N \overline{h_k \mathbf{J}_k} = -\lambda \nabla T + \sum_{k=1}^N \overline{h_k \mathbf{J}_k} \simeq -\lambda \nabla \tilde{T} + \sum_{k=1}^N \overline{h_k \mathbf{J}_k}. \quad (1.31)$$

Les coefficients phénoménologiques  $D_k$ ,  $\mu$  et  $\lambda$ , ainsi que  $h_k$ , sont aussi déterminés à partir des grandeurs résolues  $\tilde{T}$  et  $\tilde{Y}_k$ .

### Fermeture des termes turbulents des équations de Navier-Stokes filtrées

Le tenseur des contraintes turbulentes est donné par l'équation (1.32) :

$$\boldsymbol{\tau}^t = -\bar{\rho} \left( \widetilde{\mathbf{V}\mathbf{V}} - \tilde{\mathbf{V}}\tilde{\mathbf{V}} \right) - \bar{\rho} \left( \widetilde{\mathbf{V}\mathbf{V}''} + \widetilde{\mathbf{V}''\mathbf{V}} \right) - \bar{\rho} \widetilde{\mathbf{V}''\mathbf{V}''}. \quad (1.32)$$

Le premier terme, appelé tenseur de Léonard, est naturellement fermé car fonction des grandeurs résolues. Les deux autres, respectivement appelés tenseur croisé et tenseur de Reynolds, sont fonction des grandeurs de sous-maille et requièrent a priori tous les deux un modèle de fermeture. Toutefois, il est d'usage de réduire  $\boldsymbol{\tau}^t$  au seul tenseur de Reynolds et de le modéliser par l'hypothèse de Boussinesq :

$$\boldsymbol{\tau}^t \simeq -\bar{\rho} \widetilde{\mathbf{V}''\mathbf{V}''} \simeq 2\mu_t \left[ \tilde{\mathbf{S}} - \frac{1}{3} (\nabla \cdot \tilde{\mathbf{V}}) \mathbf{I} \right] - \frac{2}{3} \bar{\rho} k \mathbf{I}, \quad (1.33)$$

avec  $\mu_t$  la viscosité de sous-maille,  $\tilde{\mathbf{S}}$  la partie symétrique des gradients de vitesse résolue  $\tilde{\mathbf{V}}$  et  $k$  l'énergie cinétique turbulente, négligée en pratique. Dans ce travail de thèse, la viscosité de sous-maille est évaluée par le modèle classique de Smagorinsky, avec un amortissement l'annulant en proche paroi [79] :

$$\mu_t = \bar{\rho} l^2 \sqrt{2\tilde{\mathbf{S}} : \tilde{\mathbf{S}}}, \quad l = \min(C_S \Delta, \kappa \|\mathbf{d}_p\|). \quad (1.34)$$

$\Delta$  est la taille du filtre, calculée comme le diamètre des mailles :

$$\Delta \simeq 6 \frac{\mathcal{V}}{\mathcal{A}}, \quad (1.35)$$

avec  $\mathcal{V}$  le volume de la maille et  $\mathcal{A}$  l'aire totale de ses faces.  $\kappa = 0,44$  est la constante de Karman,  $C_S$  la constante de Smagorinsky, comprise usuellement entre 0,1 et 0,2 selon la configuration étudiée.  $\mathbf{d}_p$  est le vecteur distance à la paroi. On notera qu'il existe de nombreux modèles de fermeture du tenseur des contraintes turbulentes pour la LES dans la littérature, certains étant d'ailleurs mentionnés au chapitre 7. Le lecteur intéressé est ici invité à consulter l'ouvrage de Sagaut [91] pour un tour d'horizon de ces modèles.

Les flux de diffusion turbulentes des espèces et de l'énergie totale sont communément évalués sous l'hypothèse *gradient-diffusion* par analogie avec les flux de diffusion laminaires :

$$\mathbf{J}_k^t = -\frac{\mu_t}{Sc_t} \nabla \tilde{Y}_k, \quad (1.36)$$

$$\mathbf{J}_{e_t}^t = -\frac{\mu_t c_p}{Pr_t} \nabla \tilde{T} + \sum_{k=1}^N \overline{h_k \mathbf{J}_k^t} + \boldsymbol{\tau}^t \tilde{\mathbf{V}}, \quad (1.37)$$

où  $Sc_t$  et  $Pr_t$  sont respectivement les nombres de Schmidt et de Prandtl turbulents, égaux à 0,9 en général.  $c_p$  est calculé en fonction des grandeurs résolues  $\tilde{T}$  et  $\tilde{Y}_k$ .

La fermeture du terme  $\overline{\omega_k}$  est traitée dans la prochaine section.

### 1.1.3 Modélisation de la combustion

On introduit ici les principes fondamentaux de la modélisation de la combustion, en partie repris des travaux de thèse de Dorey [20] et Boucher [8]. Le lecteur intéressé est aussi invité à consulter l'ouvrage de référence de Poinso et Veynante [84], sur lequel s'appuie également ce travail, pour plus de détails.

#### Définitions élémentaires

On désigne par combustion la réaction exothermique d'un combustible F et d'un oxydant O, représentée par la réaction irréversible :



où  $v'_F$  et  $v'_O$  sont respectivement les coefficients stœchiométriques de F et O. La richesse du mélange réactif est le quotient des masses de combustible et d'oxydant, rapporté à ce quotient dans les conditions stœchiométriques :

$$\phi = \frac{Y_F}{Y_O} \cdot \left( \frac{Y_F}{Y_O} \right)_{st}^{-1} = \frac{Y_F}{Y_O} \cdot \left( \frac{v'_F \mathcal{M}_F}{v'_O \mathcal{M}_O} \right)^{-1}. \quad (1.39)$$

Quand  $\phi$  est inférieure à 1, le mélange est dit pauvre, l'oxydant est en excès et le combustible totalement consommé dans la réaction (1.38). Quand  $\phi$  est supérieure à 1, le mélange est dit riche, le combustible est en excès et l'oxydant totalement consommé. Quand  $\phi$  est égale à 1, le mélange est dit stœchiométrique, le combustible et l'oxydant sont tous deux totalement consommés dans la réaction (1.38).

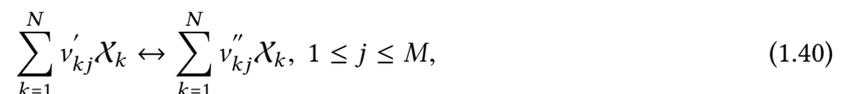
Les flammes sont généralement classées en trois catégories, ou régimes de combustion. En régime de prémélange, les réactants, i.e. le combustible et l'oxydant, sont mélangés avant leur injection. Après allumage, un front de flamme mince s'établit entre les gaz frais et les gaz brûlés, et la flamme se propage dans les gaz frais, localement chauffés par les gaz brûlés, à une vitesse caractéristique  $s_L$  appelée vitesse de flamme. Le régime de prémélange a l'avantage de limiter les émissions polluantes si le mélange de gaz frais injecté est pauvre. Il présente néanmoins un risque, particulièrement pour les foyers industriels, du fait de la remontée possible de la flamme dans les injecteurs et de l'éventuelle inflammation du mélange dans les réservoirs ou les lignes d'alimentation en présence de points chauds.

En régime non-prémélangé ou de diffusion, les réactants ne sont pas mélangés avant leur injection, si bien que le front de flamme ne s'établit que dans la zone de mélange du combustible et de l'oxydant. La combustion est ainsi majoritairement stœchiométrique, alors qu'elle a lieu à la richesse du mélange de gaz frais en prémélange. Le régime de diffusion a l'avantage de prévenir la remontée de la flamme dans les injecteurs, mais l'allumage et la stabilisation de celle-ci, conditionnés par le mélange des réactants, peuvent devenir difficiles. Ce régime conduit par ailleurs à des températures plus élevées dans la flamme qu'en prémélange, ce qui favorise la formation de polluants tels que les oxydes d'azote.

Le régime de prémélange partiel est usuellement rencontré dans les foyers industriels, où le mélange du combustible et de l'oxydant, injectés séparément, n'est pas homogène. Des flammes de prémélange ou de diffusion se développent ainsi en fonction de la richesse et de la température locales.

#### Cinétique chimique

La réaction irréversible (1.38) est insuffisante à la modélisation du phénomène complexe qu'est la combustion. On considère plus généralement  $M$  réactions réversibles entre les  $N$  espèces du mélange sous la forme :



avec  $v'_{kj}$  et  $v''_{kj}$  les coefficients stœchiométriques respectivement des réactants et des produits dans la réaction  $j$ . Le terme source de masse d'une espèce  $\mathcal{X}_k$ , introduit dans l'équation (1.1), est alors donné par l'équation (1.41) :

$$\dot{\omega}_k = \mathcal{M}_k \sum_{j=1}^M (v''_{kj} - v'_{kj}) \cdot \left( \mathcal{K}_j^f \prod_{i=1}^N [X_i]^{v'_{ij}} - \mathcal{K}_j^b \prod_{i=1}^N [X_i]^{v''_{ij}} \right), \quad (1.41)$$

avec par définition :

$$\sum_{k=1}^N \dot{\omega}_k = 0. \quad (1.42)$$

$[X_k]$  est la concentration de l'espèce  $\mathcal{X}_k$  :

$$[X_k] = \frac{\rho Y_k}{\mathcal{M}_k}. \quad (1.43)$$

$\mathcal{K}_j^f$  et  $\mathcal{K}_j^b$  sont les vitesses de réaction respectivement directe et inverse de la réaction  $j$ . La vitesse de la réaction directe est communément déterminée par la loi empirique d'Arrhénus en fonction de la température du mélange :

$$\mathcal{K}_j^f = A_j T^{\beta_j} \exp\left(-\frac{T_{aj}}{T}\right), \quad (1.44)$$

où  $A_j$  est appelée constante pré-exponentielle,  $\beta_j$  exposant de température et  $T_{aj}$  température d'activation. La vitesse de la réaction inverse est calculée par l'équation (1.45) :

$$\mathcal{K}_j^b = \frac{\mathcal{K}_j^f}{\mathcal{K}_j^c}, \quad (1.45)$$

avec  $\mathcal{K}_j^c$  la constante d'équilibre de la réaction  $j$  exprimée en fonction des propriétés thermodynamiques du mélange :

$$\mathcal{K}_j^c = \left(\frac{p_a}{\mathcal{R}T}\right)^{\sum_{k=1}^N (v''_{kj} - v'_{kj})} \exp\left(\frac{\Delta S_j^0}{\mathcal{R}} - \frac{\Delta H_j^0}{\mathcal{R}T}\right), \quad (1.46)$$

où  $p_a = 1$  bar.  $\Delta S_j^0$  et  $\Delta H_j^0$  sont respectivement les variations d'entropie et d'enthalpie dans la réaction  $j$  :

$$\Delta \zeta_j^0 = \sum_{k=1}^N v''_{kj} \zeta_k - \sum_{k=1}^N v'_{kj} \zeta_k, \quad (1.47)$$

avec  $\zeta = H$  ou  $S$ , et  $\zeta_k$  la valeur de la variable  $\zeta$  pour l'espèce  $\mathcal{X}_k$ .

Les mécanismes réactionnels de combustion sont généralement classés en trois catégories. Les mécanismes détaillés incluent plusieurs dizaines d'espèces et plusieurs centaines de réactions. Leur utilisation directe pour la simulation de configuration complexe est toutefois difficile en raison de leur coût de mise en œuvre, et des temps caractéristiques très variés induits par la cinétique chimique. Une alternative consiste à pré-tabuler les termes source des variables transportées ou directement la composition du mélange et sa température sur des cas-tests canoniques puis d'exploiter ces tables sur des configurations complexes. En régime de diffusion, les approches FPV (*Flamelet/Progress Variable*) [83] et FGM (*Flamelet Generated Manifold*) [105], basées sur la théorie des flamelettes de Peters [82], sont les plus courantes. Une flamme de diffusion à contre-courant est simulée dans les deux cas pour générer

une table d'états thermo-chimiques, les solutions stockées et les variables d'indexation de la table étant néanmoins différentes. En régime de prémélange, l'approche FPI (*Flame Prolongation of ILDM*) [46], disponible dans le code CEDRE, est aussi courante. Une flamme laminaire de prémélange est dans ce cas simulée pour construire une table d'états thermo-chimiques indexée par une variable d'avancement adaptée au suivi de la combustion. Les méthodes de tabulation ont l'avantage d'être peu coûteuses. Toutefois, elles sont limitées par les hypothèses de génération des tables, comme le régime de combustion ou la prise en compte des pertes thermiques, pour laquelle une variable d'indexation telle que l'enthalpie [30] doit leur être ajoutée. L'extension de ces méthodes aux espèces à chimie lente, le NO par exemple, est par ailleurs problématique [9].

Les mécanismes squelettiques incluent quelques dizaines d'espèces et quelques centaines de réactions. Ils sont obtenus par réduction des mécanismes détaillés, en supprimant les réactions et les espèces inutiles au calcul de grandeurs cibles telles que le délai d'auto-inflammation dans un réacteur, ou la vitesse de flamme, le profil de température ou ceux de concentration d'un ensemble d'espèces dans une flamme canonique [18]. Moins coûteux que les mécanismes détaillés, ils constituent une alternative aux méthodes de tabulation<sup>1</sup>, leur domaine d'application n'étant limité que par le choix des cas-tests et des points de fonctionnement utilisés pour la réduction. L'amplitude des temps caractéristiques de réaction peut également être diminuée, facilitant l'intégration temporelle des équations de Navier-Stokes. On notera que le coût et la raideur des mécanismes squelettiques peuvent encore être réduits par la mise à l'équilibre d'espèces à chimie rapide, on parle alors de mécanismes réduits analytiquement, comme détaillés au chapitre 2.

Les mécanismes globaux incluent une dizaine d'espèces et quelques réactions. Seules l'oxydation du combustible et la dissociation des produits de combustion majoritaires sont usuellement prises en compte. La prédiction correcte de grandeurs telles que la vitesse de flamme peut par ailleurs nécessiter la correction des vitesses de réaction en fonction de la richesse par la méthode PEA (*Pre-Exponential Adjusted*) [32].

Par souci de complétude, on cite enfin les travaux récents de Cailler [11] en chimie virtuelle. Son approche consiste à générer un mécanisme réactionnel réduit avec des espèces et des réactions virtuelles. Les propriétés thermodynamiques et les paramètres cinétiques des réactions sont alors obtenus par optimisation d'un ensemble de grandeurs cibles sur une bibliothèque de cas-tests canoniques.

## Interaction chimie-turbulence

Comme indiqué par Poinso et Veynante [84], dans le cas d'un écoulement réactif turbulent, il existe des interactions complexes entre chimie et turbulence. La turbulence modifie en effet la structure de la flamme, ce qui peut augmenter l'intensité des réactions chimiques mais aussi provoquer son extinction. Le dégagement de chaleur peut être source de turbulence en raison des fluctuations de vitesse générées, ou au contraire induire la relaminarisation de l'écoulement sous l'effet de l'augmentation de viscosité à travers la flamme.

La principale problématique liée à la prise en compte de l'interaction chimie-turbulence pour la simulation d'écoulements réactifs turbulents est le filtrage des termes source de masse des espèces  $\dot{\omega}_k$ , au même titre que celui des autres termes des équations de Navier-Stokes pour la modélisation de la turbulence. Le taux de réaction d'une espèce  $X_k$ , donné par l'équation (1.41), est en effet non-linéaire en température et en concentrations, si bien que la fermeture du taux de réaction filtré  $\overline{\dot{\omega}_k}$  requiert un modèle spécifique. On présente dans la suite trois modèles pour la LES, utiles à la compréhension du chapitre 7. Beaucoup d'autres modèles existent néanmoins, on pourra par exemple consulter [84].

En supposant le maillage suffisamment raffiné pour résoudre la structure de la flamme, une première approche consiste à évaluer le terme source de masse filtré des espèces  $\overline{\dot{\omega}_k}$  directement en fonction de la

---

1. On ne considère pas ici la modélisation de l'interaction chimie-turbulence. On notera néanmoins que les méthodes de tabulation prennent généralement en compte cette interaction directement dans les tables, tandis que les mécanismes squelettiques ou globaux requièrent un traitement indépendant.

température et des concentrations aux échelles résolues. C'est d'ailleurs ce « non-modèle », déjà utilisé par Dorey [20], Boucher [8] ou encore Eberle et al. [26] pour la simulation d'un foyer complexe, qui sera mis en œuvre dans le chapitre 9.

Une deuxième approche est d'épaissir artificiellement la flamme dans le but de résoudre sa structure sur un maillage grossier, on parle alors de modèle TFLES (*Thickened Flame model for LES*) [14, 16]. Pour cela, les coefficients de diffusion des espèces sont multipliés par une fonction d'épaississement, notée  $F$ , et les termes source de masse  $\dot{\omega}_k$  sont divisés par cette même fonction pour ne pas modifier la vitesse de flamme en régime laminaire. Les deux termes sont aussi multipliés par une fonction d'efficacité, notée  $E$ , en régime turbulent afin de modéliser le plissement de la flamme non résolu à l'échelle de sous-maille, gommé par l'épaississement. Ainsi,

$$\overline{\dot{\omega}_k} = \frac{E}{F} \dot{\omega}_k. \quad (1.48)$$

Il est également possible de n'épaissir la flamme que dans les zones réactives grâce à l'introduction d'un senseur de flamme  $\alpha$  dans l'expression de la fonction  $F$ . On parle dans ce cas de DTFLES (*Dynamically Thickened Flame model for LES*) [63]. Le lecteur intéressé est invité à consulter les travaux de Boucher [8] sur l'implémentation de ces modèles dans le code CEDRE, en particulier pour l'approche FPI.

Une troisième approche est de définir une fonction de probabilité, notée  $\Phi$ , dépendant des variables naturelles  $\mathbf{u}$  afin de calculer le terme source de masse filtré des espèces  $\overline{\dot{\omega}_k}$  :

$$\overline{\dot{\omega}_k} = \int_{\mathbf{u}_1, \dots, \mathbf{u}_{N+5}} \dot{\omega}_k \Phi(\mathbf{u}_1, \dots, \mathbf{u}_{N+5}) d\mathbf{u}_1 \dots d\mathbf{u}_{N+5}, \quad (1.49)$$

où  $\Phi(\mathbf{u}_1, \dots, \mathbf{u}_{N+5}) d\mathbf{u}_1 \dots d\mathbf{u}_{N+5}$  est la probabilité de trouver les variables  $\mathbf{u}_i$  entre  $\mathbf{u}_i$  et  $\mathbf{u}_i + d\mathbf{u}_i$  avec  $1 \leq i \leq N + 5$ . La forme de la fonction de probabilité  $\Phi$  est usuellement présumée, on parle alors de modèle à PDF (*Probability Density Function*) présumée [106].

### 1.1.4 Méthodes numériques du solveur CHARME

On présente ici les principes de la discrétisation spatiale et de l'intégration temporelle dans le solveur CHARME. Le lecteur intéressé est invité à consulter les travaux de thèse de Bertier [3], Haider [50] et Le Touze [62], sur lesquels s'appuie ce paragraphe, pour plus de détails.

#### Discrétisation spatiale

Les équations de Navier-Stokes sont discrétisées dans le solveur CHARME par la méthode des volumes finis, sur un maillage polyédrique généralisé, avec l'approche *cell-centered*. Les quantités conservées  $\mathbf{q}$ , les variables naturelles  $\mathbf{u}$  et leurs gradients sont ainsi calculés et stockés au centre des mailles.

Les flux de diffusion aux faces des mailles sont calculés avec un schéma centré à partir des variables et de leurs gradients au centre des mailles adjacentes. Les flux convectifs sont calculés avec des schémas décentrés par résolution d'un problème de Riemann, comme explicité dans [62]. Le schéma HLLC [103] avec correction bas Mach [95], peu dissipatif et adapté aux écoulements à faible Mach, est en particulier majoritairement mis en œuvre dans ce travail.

Un schéma MUSCL (*Monotonic Upwind Scheme for Conservation Laws*) est utilisé. Les flux hyperboliques sont ainsi évalués en fonction des variables reconstruites aux faces et non au centre des mailles, afin de garantir une discrétisation spatiale d'ordre 2 à 4. L'interpolation des variables aux faces couvre deux aspects :

1. **Gradient** : un même gradient est utilisé dans chaque maille pour interpoler la variable  $\varphi$  à toutes les faces dans ce travail. On parle d'approche monopente, usuellement adoptée dans CHARME. Le gradient de maille d'une variable  $\varphi$  est calculé sur le premier voisinage par face de la maille par la méthode des moindres carrés [66]. Il est limité afin de respecter le principe du maximum local

selon une procédure de limitation non directionnelle, identique pour chacune de ses composantes. Le gradient est aussi lissé sur le premier voisinage par face des mailles tétraédriques pour assurer la stabilité de la discrétisation spatiale.

2. **Variables interpolées** : Les variables interpolées aux faces  $\mathbf{w}$  sont les variables naturelles  $\mathbf{u}$  ou une combinaison des variables naturelles et des quantités conservées :

$$\mathbf{w} = \begin{pmatrix} \rho Y_1 \\ \vdots \\ \rho Y_N \\ p \\ T \\ V_x \\ V_y \\ V_z \end{pmatrix} \quad (1.50)$$

afin de garantir la robustesse de la reconstruction de  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{q}$  aux faces.

### Intégration temporelle

Les équations de Navier-Stokes discrétisées par la méthode des volumes finis peuvent être écrites sous la forme d'un système :

$$\mathbf{M} \frac{d\mathbf{Q}}{dt} = \mathbf{F}(\mathbf{Q}(t)), \quad (1.51)$$

avec  $\mathbf{Q}$  le vecteur des quantités conservées au centre des mailles,  $\mathbf{M}$  la matrice de masse et  $\mathbf{F}$  le vecteur des déséquilibres regroupant les termes sources au centre des mailles et les flux aux faces. L'intégration du système (1.51) entre deux instants  $t^n$  et  $t^{n+1}$  conduit à l'expression (1.52) :

$$\mathbf{M} \delta \mathbf{Q}^n = \frac{1}{\Delta t} \int_{t^n}^{t^{n+1}} \mathbf{F}(\mathbf{Q}(t)) dt, \quad (1.52)$$

où  $\Delta t = t^{n+1} - t^n$  est le pas de temps,  $\mathbf{Q}^n = \mathbf{Q}(t^n)$  et

$$\delta \mathbf{Q}^n = \frac{\mathbf{Q}^{n+1} - \mathbf{Q}^n}{\Delta t}, \quad (1.53)$$

est la variation du vecteur des quantités conservées entre les instants  $t^n$  et  $t^{n+1}$  à déterminer.

Deux familles de méthode d'intégration temporelle sont communément définies dans la littérature. Les méthodes explicites utilisent le vecteur des quantités conservées à l'instant  $t^n$  pour déterminer  $\delta \mathbf{Q}^n$ , comme la méthode Euler explicite d'ordre 1 :

$$\mathbf{M} \delta \mathbf{Q}^n = \mathbf{F}(\mathbf{Q}^n). \quad (1.54)$$

Pour ces méthodes, l'évaluation de  $\delta \mathbf{Q}^n$  ne nécessite avantagement que l'inversion de la matrice  $\mathbf{M}$ . Le pas de temps est toutefois limité dans le cas des équations hyperboliques par la condition de stabilité CFL (*Courant-Friedrich-Lewy*), ce qui peut être contraignant :

$$\Delta t < \text{CFL}_{max} \frac{\Delta x}{\|\mathbf{V}\| + c}, \quad (1.55)$$

avec  $\Delta x$  la taille de maille,  $c$  la vitesse du son et  $\text{CFL}_{max}$  la valeur limite du nombre de CFL ( $\text{CFL}_{max} < 1$ ).

Les méthodes implicites utilisent les vecteurs des quantités conservées aux instants  $t^n$  et  $t^{n+1}$  pour déterminer  $\delta \mathbf{Q}^n$ . Le  $\theta$ -schéma d'ordre 1 donne par exemple :

$$\mathbf{M} \delta \mathbf{Q}^n = \theta \cdot \mathbf{F}(\mathbf{Q}^{n+1}) + (1 - \theta) \cdot \mathbf{F}(\mathbf{Q}^n), \quad (1.56)$$

où  $\theta = 0$  correspond à la méthode Euler explicite. Pour ces méthodes, le pas de temps n'est plus limité par une condition de stabilité CFL. Néanmoins, l'évaluation de  $\delta\mathbf{Q}^n$  – moins directe – requiert l'introduction d'approximations dégradant la qualité de la solution :

1. **Linéarisation du second membre** : le second membre du système (1.56) est généralement non linéaire. Le terme  $\mathbf{F}(\mathbf{Q}^{n+1})$  est donc linéarisé par un développement limité à l'ordre 1 pour pouvoir utiliser des méthodes de résolution itératives :

$$\mathbf{F}(\mathbf{Q}^{n+1}) \simeq \mathbf{F}(\mathbf{Q}^n) + \left. \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial \mathbf{Q}} \right|^n \delta\mathbf{Q}^n \Delta t, \quad (1.57)$$

ce qui conduit au système linéaire suivant :

$$(\mathbf{M} - \theta \Delta t \mathbf{J}^n) \delta\mathbf{Q}^n = \mathbf{F}(\mathbf{Q}^n), \quad (1.58)$$

avec  $\mathbf{J}^n$  la matrice jacobienne du système à l'instant  $t^n$  :

$$\mathbf{J}^n = \left. \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial \mathbf{Q}} \right|^n. \quad (1.59)$$

2. **Approximation de la matrice jacobienne** : la matrice jacobienne est approchée avec une reconstruction spatiale d'ordre 1 seulement. La reconstruction spatiale d'ordre 2 – sur le second voisinage des mailles – peut en effet être coûteuse en maillage non-structuré. Aussi, elle conduit à une matrice lourde à stocker et mal conditionnée pour la résolution du système.
3. **Résolution itérative du système linéaire** : le système linéaire est résolu par la méthode GMRES, détaillée dans les travaux de Selva [96] et Bertier [3].

Dans ce travail, la méthode implicite de Gear d'ordre 2 [39], implémentée dans le solveur CHARME par Sainte-Rose [93], sera utilisée. Elle a la particularité d'être à deux pas de temps :

$$(\mathbf{M} - \frac{2}{3} \Delta t \mathbf{J}^n) \delta\mathbf{Q}^n = \frac{2}{3} \mathbf{F}(\mathbf{Q}^n) + \frac{1}{3} \mathbf{M} \delta\mathbf{Q}^{n-1}, \quad (1.60)$$

l'évaluation de  $\delta\mathbf{Q}^n$  nécessitant alors le stockage de  $\delta\mathbf{Q}^{n-1}$ . On notera que Sainte-Rose propose d'ajouter une procédure de sous-itérations à la méthode de Gear afin de compenser l'approximation de la matrice jacobienne. Cette procédure ne sera toutefois pas appliquée dans la suite compte tenu des petits pas de temps utilisés.

## 1.2 Description lagrangienne de la phase particulaire

### 1.2.1 Équation de Williams-Boltzmann

Si le volume de la phase particulaire est toujours très petit devant celui de la phase gazeuse à l'échelle macroscopique, ce qui est généralement valide pour les particules de suie, l'hypothèse de phase dispersée peut être appliquée. La phase particulaire est alors assimilée à un ensemble d'inclusions ponctuelles dans la phase gazeuse, décrit par une approche statistique, et l'effet des particules sur la phase gazeuse est modélisé par des termes source supplémentaires dans les équations de Navier-Stokes [76].

On considère un ensemble de particules sphériques, par exemple des particules de suie, caractérisées par leur position  $\mathbf{x}$ , leur vitesse  $\mathbf{V}$ , leur rayon  $r$  et leur température  $T$ . Concernant les suies, on notera que l'hypothèse de sphéricité n'est théoriquement valable que pour les particules naissantes, ce qui sera discuté au chapitre 4. On définit également la fonction densité de probabilité du nombre de particules  $f$ , telle que  $f(\mathbf{x}, \mathbf{V}, r, T) d\mathbf{x} d\mathbf{V} dr dT$  représente le nombre moyen de particules à l'instant  $t$  dans le volume  $d\mathbf{x}$  autour du point de coordonnées  $\mathbf{x}$ , dont la vitesse, le rayon et la température sont respectivement

dans les intervalles  $[\mathbf{V}, \mathbf{V} + d\mathbf{V}]$ ,  $[r, r + dr]$  et  $[T, T + dT]$ . L'évolution de la fonction  $f$  est décrite par l'équation cinétique de Williams-Boltzmann [110] :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla_{\mathbf{x}} \cdot (\mathbf{V}f) + \nabla_{\mathbf{V}} \cdot (\mathcal{F}f) + \frac{\partial}{\partial r} (\mathcal{K}f) + \frac{\partial}{\partial T} (\mathcal{R}f) = Q_{coll}, \quad (1.61)$$

où  $\nabla_{\mathbf{x}}$  est l'opérateur de divergence dans l'espace physique et  $\nabla_{\mathbf{V}}$  l'opérateur de divergence dans l'espace des vitesses. Comme expliqué dans [62], chaque terme de l'équation (1.61) est associé à un phénomène physique :

- le transport des particules :  $\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla_{\mathbf{x}} \cdot (\mathbf{V}f)$ ,
- les forces extérieures, usuellement la traînée due à la phase gazeuse et/ou la gravité :  $\mathcal{F} = \frac{d\mathbf{V}}{dt}$ ,
- les transferts de masse avec la phase gazeuse :  $\mathcal{K} = \frac{dr}{dt}$ ,
- les transferts de chaleur avec la phase gazeuse :  $\mathcal{R} = \frac{dT}{dt}$ ,
- les collisions entre particules :  $Q_{coll}$ . Leur fragmentation, inutile à la modélisation des particules de suie, peut également être prise en compte.

### 1.2.2 Méthodes numériques du solveur SPARTE

L'équation d'évolution de la fonction densité de probabilité du nombre de particules  $f$  est résolue dans le solveur SPARTE en approche lagrangienne. Pour cela,  $f$  est approchée par une somme pondérée de  $N$  Dirac dans l'espace d'état des particules sans hypothèse préalable sur sa forme [76] :

$$f_N(t) = \sum_{i=1}^N w_i(t) \delta_{\mathbf{x}=\mathbf{x}_i(t)} \delta_{\mathbf{V}=\mathbf{V}_i(t)} \delta_{r=r_i(t)} \delta_{T=T_i(t)}, \quad (1.62)$$

où un Dirac représente une particule numérique de poids  $w_i$ , regroupant  $w_i$  particules physiques réelles situées autour du point de coordonnées  $\mathbf{x}_i$ , ayant la même vitesse  $\mathbf{V}_i$ , le même rayon  $r_i$  et la même température  $T_i$ .

À chaque pas de temps du solveur SPARTE, la résolution numérique de l'équation (1.61) est décomposée en trois étapes successives :

1. **Nucléation** : l'étape de nucléation, nouvelle ici, est liée au transfert de masse de la phase gazeuse vers la phase dispersée, modélisé par des termes source de masse négatifs pour la phase gazeuse et positifs pour la phase dispersée. Sa modélisation et sa mise en œuvre feront l'objet du chapitre 2.
2. **Collisions** : l'étape de collision est associée à l'opérateur  $Q_{coll}$ , modélisé au chapitre 4.
3. **Transport** : l'étape de transport est liée au déplacement, au chauffage et au changement de taille des particules.

Dans ce travail de thèse, le diamètre des sphérules est inférieur à  $1 \mu\text{m}$ , si bien que les particules sont supposées se comporter comme des traceurs de température uniforme en volume. Leur température et leur vitesse sont ainsi identiques à celles de la phase porteuse, notées  $T_g$  et  $\mathbf{V}_g$ , l'indice  $g$  étant adopté pour différencier les propriétés des phases gazeuse et dispersée si nécessaire. L'état des particules à l'instant  $t^{n+1}$  est déterminé sous cette hypothèse par un système explicite de quatre équations en fonction de celui à l'instant  $t^n$  :

$$\begin{cases} \mathbf{V}_i^{n+1} = \mathbf{V}_g, \\ \mathbf{x}_i^{n+1} = \mathbf{x}_i^n + \mathbf{V}_g \Delta t, \\ T_i^{n+1} = T_g, \\ m_i^{n+1} = m_i^n + \dot{\omega}_{tot,i} \mathcal{V} \Delta t. \end{cases} \quad 1 \leq i \leq N, \quad (1.63)$$

où une équation linéaire d'évolution de la masse est substituée à l'équation d'évolution du rayon normalement attendue.  $\dot{\omega}_{tot,i}$  est le terme source de masse de la particule  $i$  – résultant des transferts de masse entre les phases gazeuse et dispersée – et  $\mathcal{V}$  le volume de la cellule la contenant. La modélisation de  $\dot{\omega}_{tot,i}$  et le calcul du nouveau rayon des particules seront détaillés au chapitre 3. Le lecteur intéressé trouvera une description plus générale de l'étape de transport dans le solveur SPARTE, avec une modélisation néanmoins adaptée aux sprays de gouttes de kérosène ou d'alumine, dans les travaux de thèse de Hylkema [54] et Dorey [20]. Il pourra également consulter [76] et [62] pour plus de détails sur les méthodes eulériennes de résolution de l'équation (1.61).

À chaque pas de temps, les particules numériques sont aussi suivies par le module de trajectographie SPIDER, développé à l'ONERA. Son rôle est de déterminer la cellule du maillage partagé avec le solveur CHARME dans laquelle se trouve chaque particule. Il est dès lors possible d'accéder à la géométrie de la cellule, ainsi que d'extraire les grandeurs locales de la phase gazeuse utiles aux trois étapes d'évolution de la phase dispersée et à la modélisation des interactions entre les deux phases. Dans le cas d'un calcul LES, on notera que les grandeurs extraites par le solveur SPARTE sont celles aux échelles résolues.

### 1.2.3 Rétroaction des particules sur la phase gazeuse

Comme déjà indiqué, la rétroaction de la phase dispersée sur la phase gazeuse est modélisée par des termes sources supplémentaires dans les équations de Navier-Stokes.

#### Masse des espèces

Les transferts de masse entre la phase dispersée et la phase gazeuse par des processus chimiques à l'étape de transport seront décrits au chapitre 3. De façon générale, un terme source est calculé pour chacune des espèces réagissant avec les particules de suie et ajouté au second membre de l'équation (1.1).

#### Quantité de mouvement

Le terme source de quantité de mouvement, ajouté au second membre de l'équation (1.5), est déterminé dans chaque cellule  $c$  comme suit :

$$S_{\rho\mathbf{V}} \sim - \int \frac{d(m\mathbf{V})}{dt} f d\mathbf{V} dr dT = - \frac{1}{\mathcal{V}_c \Delta t} \sum_{p \in \mathcal{P}_c} w_p \left( m_p^{n+1} \mathbf{V}_p^{n+1} - m_p^n \mathbf{V}_p^n \right), \quad (1.64)$$

où  $\mathcal{V}_c$  est le volume de  $c$ ,  $\mathcal{P}_c$  l'ensemble des particules dans  $c$  et  $\Delta t$  le pas de temps.

#### Énergie

Le terme source d'énergie totale, ajouté au second membre de l'équation (1.10), est déterminé dans chaque cellule  $c$  comme suit :

$$\begin{aligned} S_{\rho e_t} &\sim - \int \left[ \frac{d}{dt} \left( \frac{m\mathbf{V}^2}{2} \right) + mc \frac{dT}{dt} \right] f d\mathbf{V} dr dT, \\ &= - \frac{1}{\mathcal{V}_c \Delta t} \sum_{p \in \mathcal{P}_c} w_p \left[ \frac{m_p^{n+1} \|\mathbf{V}_p^{n+1}\|^2}{2} - \frac{m_p^n \|\mathbf{V}_p^n\|^2}{2} + m_p^n c_p^n \left( T_p^{n+1} - T_p^n \right) \right], \end{aligned} \quad (1.65)$$

où  $c$  est la capacité calorifique massique des particules.

Les termes source de quantité de mouvement et d'énergie totale représentent la quantité de mouvement, ainsi que l'énergie cinétique et thermique, cédées par la phase gazeuse à la phase dispersée entre les instants  $t^n$  et  $t^{n+1}$  pour que la vitesse et la température des particules suivent celles du gaz.

### 1.2.4 Définition des diamètres statistiques

Afin de caractériser la phase dispersée ou de confronter simulations numériques et mesures expérimentales, on définit communément les diamètres statistiques  $d_{pq}$  :

$$d_{pq} = \frac{\sum_{i=1}^N w_i d_i^p}{\sum_{i=1}^N w_i d_i^q}, \quad (1.66)$$

où  $d$  est le diamètre des particules,  $N$  le nombre de particules numériques considérées et  $p, q$  deux entiers positifs. Dans la suite de ce travail, deux diamètres seront utilisés :

1. **Diamètre moyen**  $d_{10}$  :  $d_{10}$  est la moyenne arithmétique du diamètre des particules numériques.
2. **Diamètre de Sauter**  $d_{32}$  :  $d_{32}$  est proportionnel au rapport du volume total et de la surface totale des particules.

On rappelle aussi la définition de la fraction volumique de particules sphériques dans une cellule  $c$  :

$$f_v = \frac{\frac{\pi}{6} \sum_{p \in \mathcal{P}_c} w_p d_p^3}{\mathcal{V}_c}. \quad (1.67)$$

## 1.3 Couplage des solveurs CHARME et SPARTE

Dans ces travaux, les solveurs CHARME et SPARTE seront utilisés avec un pas de temps identique. Le schéma de couplage classique mis en œuvre est présenté sur la figure 1.2 :

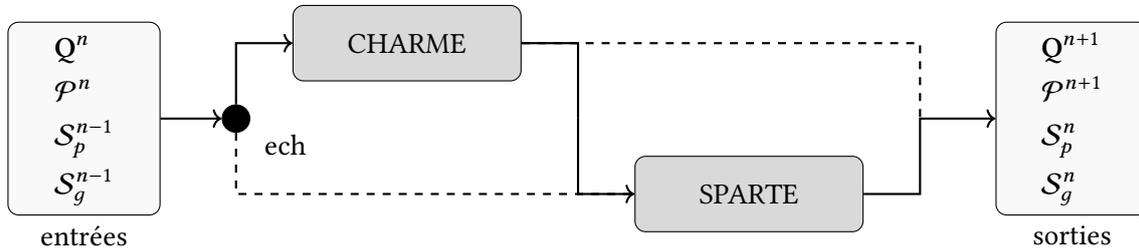


FIGURE 1.2 – Couplage CHARME-SPARTE standard.

1. **Entrées CEDRE** : en début de cycle CEDRE, les grandeurs connues sont les quantités conservées  $Q^n$ , les particules numériques  $\mathcal{P}^n$ , les termes source de couplage de la phase gazeuse vers la phase dispersée  $S_g^{n-1}$  et de la phase dispersée vers la phase gazeuse  $S_p^{n-1}$  déterminées au cours du cycle précédent en fonction de  $Q^{n-1}$  et  $\mathcal{P}^{n-1}$ .
2. **Échange** : les grandeurs sont échangées entre les solveurs. CHARME reçoit  $S_p^{n-1}$ , SPARTE  $S_g^{n-1}$  et  $Q^n$ .
3. **Cycle CHARME** : le solveur CHARME avance en temps de  $t^n$  à  $t^{n+1}$ .

$$\begin{Bmatrix} Q^n \\ S_p^{n-1} \end{Bmatrix} \xrightarrow{\text{CHARME}} \begin{Bmatrix} Q^{n+1} \\ S_g^n \end{Bmatrix} \quad (1.68)$$

4. **Cycle SPARTE** : le solveur SPARTE avance en temps de  $t^n$  à  $t^{n+1}$ .

$$\begin{Bmatrix} P^n \\ Q^n \\ S_g^{n-1} \end{Bmatrix} \xrightarrow{\text{SPARTE}} \begin{Bmatrix} P^{n+1} \\ S_p^n \end{Bmatrix} \quad (1.69)$$

5. **Sorties CEDRE** : en fin de cycle CEDRE, les grandeurs connues sont  $Q^{n+1}$ ,  $\mathcal{P}^{n+1}$ ,  $S_g^n$  et  $S_p^n$  déterminées au cours du cycle en fonction de  $Q^n$  et  $\mathcal{P}^n$ .

On notera que les solveurs CHARME et SPARTE avancent simultanément en temps de  $t^n$  à  $t^{n+1}$ . En revanche, partageant les mêmes processeurs et le même découpage en sous-domaines pour la parallélisation, ils sont exécutés l'un après l'autre.

## **Bilan**

Dans ce chapitre, on a introduit les principes fondamentaux de la simulation d'écoulements gaz-particules dans le code CEDRE, la phase gazeuse étant décrite par le solveur CHARME et la phase particulaire par le solveur SPARTE. On a ainsi posé les fondations de ce travail de thèse, dont les briques, détaillées dans les chapitres suivants, ont d'ores et déjà été positionnées.

## **Première partie**

# **Développement d'un modèle de particules de suie sphériques en approche lagrangienne dans le code CEDRE**



---

## Chapitre 2

# Mise en place d'un modèle de nucléation de particules de suie en approche couplée Euler-Lagrange

---

L'objectif de ce chapitre est de décrire la mise en place d'un modèle cinétique de nucléation de particules de suie dans le code CEDRE. Ce modèle de nucléation doit en particulier permettre de faire le lien entre les précurseurs gazeux des suies, transportés dans le solveur eulérien CHARME, et les particules de suie, traitées dans le solveur lagrangien SPARTE. Pour cela, on étend tout d'abord le modèle de cinétique chimique de CHARME, jusqu'ici limité à des mécanismes globaux, aux mécanismes détaillés avec effets de pression, ou squelettiques, ou réduits analytiquement. On explicite ensuite le calcul du terme source de nucléation de suie permettant le couplage de CHARME avec SPARTE. Enfin, on décrit la mise en place d'un algorithme d'injection de particules de suie dans SPARTE.

### Sommaire

---

2.1	Extension du modèle de cinétique chimique du solveur CHARME . . . . .	28
2.1.1	Intégration du modèle de fall-off pour les réactions à trois corps . . . . .	28
2.1.2	Intégration de l'approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée . . . . .	29
2.1.3	Mise en place d'une méthodologie de simulation de réacteur à pression et enthalpie constantes . . . . .	31
2.1.4	Validation de l'implémentation du modèle de cinétique chimique . . . . .	32
2.2	Explicitation du terme source de nucléation de suie . . . . .	35
2.2.1	Calcul générique du terme source de nucléation . . . . .	35
2.2.2	Application à la nucléation par le modèle sectionnel DLR . . . . .	36
2.3	Implémentation d'un algorithme d'injection de particules de suie . . . . .	38
2.3.1	Choix des propriétés physiques des particules de suie injectées . . . . .	38
2.3.2	Description de l'algorithme d'injection de particules de suie . . . . .	39

---

## 2.1 Extension du modèle de cinétique chimique du solveur CHARME

Dans ce travail de thèse, on veut se donner la possibilité d'utiliser directement un mécanisme réactionnel de complexité quelconque, qu'il soit détaillé [35], squelettique [23], ou même réduit analytiquement, pour décrire la nucléation des particules de suie. Pour des raisons historiques, le modèle de cinétique chimique de CHARME n'est toutefois capable de traiter correctement que des mécanismes réactionnels globaux, c'est-à-dire généralement restreints à moins de dix espèces et réactions, sans prise en compte des effets de pression. Des mécanismes réactionnels détaillés peuvent certes être utilisés dans le cadre de la méthode de tabulation FTC, développé par Boucher dans sa thèse [8], mais cette approche n'a pas été retenue ici.

### 2.1.1 Intégration du modèle de fall-off pour les réactions à trois corps

Le modèle de cinétique chimique doit en premier lieu inclure la dépendance en pression du taux d'avancement des réactions à trois corps pour pouvoir être utilisé avec une large gamme de mécanismes réactionnels. Une réaction à trois corps est, pour rappel, une réaction entre deux réactants A et B nécessitant un troisième protagoniste noté M dont le rôle est d'extraire une partie de l'énergie du produit excité AB\* pour obtenir le produit stable AB. Pour un mélange gazeux réactif de  $N$  espèces, elle est notée :



et son taux d'avancement est donné par l'équation (2.2), où  $\alpha_i$  est l'efficacité de l'espèce  $i$ .  $\mathcal{K}^f$  et  $\mathcal{K}^c$  sont respectivement la vitesse de la réaction directe et la constante d'équilibre de la réaction, introduites au chapitre 1.

$$\begin{cases} \dot{w} = \mathcal{K}^f [M] \cdot ([A][B] - (\mathcal{K}^c)^{-1} [AB]), \\ [M] = \sum_{i=1}^N \alpha_i \cdot [X_i]. \end{cases} \quad (2.2)$$

Dans le cas particulier des réactions de fall-off, identifiables à la notation (+M) pour le troisième corps, le taux d'avancement de la réaction dépend de la pression :



À basse pression, la contribution du troisième corps M doit être prise en compte et l'expression du taux d'avancement reste inchangée. Elle disparaît en revanche à haute pression. Ainsi, le taux d'avancement de la réaction (2.3) est donné par l'équation (2.4) pour ces deux cas limites :

$$\dot{w} = \mathcal{K}^f \cdot ([A][B] - (\mathcal{K}^c)^{-1} [AB]) \quad (2.4)$$

avec :

$$\begin{cases} \mathcal{K}^f = \mathcal{K}_0^f [M] & \text{quand } p \rightarrow 0, \\ \mathcal{K}^f = \mathcal{K}_\infty^f & \text{quand } p \rightarrow \infty. \end{cases} \quad (2.5)$$

La transition d'un cas à l'autre est assurée par la correction de Lindemann [68], à laquelle peut se superposer la correction de Troe [47], toutes deux dépendant de paramètres propres à la réaction. Dans ce travail de thèse, les deux corrections ont été introduites dans CHARME. Il est important de noter qu'un effort particulier a été fait sur l'implication des formules de correction par rapport à la température et à la concentration des espèces, afin de garantir la compatibilité du modèle de cinétique chimique avec l'utilisation d'un opérateur d'intégration temporelle implicite.

### Correction de Lindemann

Deux jeux de paramètres sont nécessaires à la correction de Lindemann. Il s'agit des coefficients de la loi d'Arrhénius, décrite au chapitre 1, permettant de calculer les vitesses de réaction  $\mathcal{K}_0^f$  et  $\mathcal{K}_\infty^f$ . La vitesse de la réaction directe à une pression quelconque,  $\mathcal{K}^f$ , est déterminée avec ces paramètres par l'équation (2.6) :

$$\mathcal{K}^f = \mathcal{K}_\infty^f \cdot \left( \frac{p_r}{1 + p_r} \right) \cdot F, \quad (2.6)$$

avec :

$$\begin{cases} p_r = \frac{\mathcal{K}_0^f [M]}{\mathcal{K}_\infty^f}, \\ F = 1, \end{cases} \quad (2.7)$$

où  $p_r$  est la pression réduite. Comme attendu,  $\mathcal{K}^f$  tend vers  $\mathcal{K}_0^f [M]$  à basse pression ( $p_r \ll 1$ ), et vers  $\mathcal{K}_\infty^f$  à haute pression ( $p_r \gg 1$ ).

### Correction de Troe

Pour la correction de Troe, un jeu de paramètres supplémentaire, noté  $(\alpha, T^{***}, T^*, T^{**})$ , est nécessaire. Il permet de calculer le facteur  $F$  introduit dans l'équation (2.7) selon l'équation 2.8 :

$$\begin{cases} F_t = (1 - \alpha) \cdot \exp\left(-\frac{T}{T^{***}}\right) + \alpha \cdot \exp\left(-\frac{T}{T^*}\right) + \exp\left(-\frac{T^{**}}{T}\right) \\ C = -0.4 - 0.67 \cdot \log_{10} F_t \\ N = 0.75 - 1.27 \cdot \log_{10} F_t \\ f_1 = \frac{\log_{10} p_r + C}{N - 0.14 \cdot (\log_{10} p_r + C)} \\ F = F_t^{1/(1+f_1^2)} \end{cases} \quad (2.8)$$

#### 2.1.2 Intégration de l'approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée

Les mécanismes réactionnels détaillés et squelettiques contiennent, pour rappel, de quelques dizaines à quelques centaines d'espèces et de réactions. Le coût de calcul qui en résulte peut donc être prohibitif pour la simulation de configurations industrielles. Une solution consiste, à partir d'un mécanisme squelettique, à identifier les espèces dont la durée de vie est la plus petite et à leur appliquer l'approximation de l'état quasi-stationnaire (AEQS). Leur évolution peut alors être décrite par un système d'équations algébriques moins coûteux à résoudre que leurs équations de transport, en particulier si un opérateur d'intégration temporelle implicite est utilisé. On parle dans ce cas de mécanismes réduits analytiquement, comme mentionné au chapitre 1.

Ce travail de thèse n'a pas pour ambition de développer un outil de réduction de mécanismes réactionnels et d'identification des espèces AEQS. On se concentre uniquement sur l'intégration de la fonctionnalité AEQS dans CHARME. Le lecteur est par exemple invité à consulter [69, 81] pour plus de détails sur les problématiques de réduction et d'identification.

Soit, comme au chapitre 1, un mélange gazeux de  $N$  espèces interagissant suivant  $M$  réactions réversibles, écrite pour la  $j$ -i ème comme suit :



avec  $v'$  et  $v''$  les coefficients stœchiométriques respectivement des réactants et des produits. Le taux de réaction molaire d'une espèce  $X_k$  est déterminé par l'équation 2.10, où  $\mathcal{K}^b = \mathcal{K}^f \cdot (\mathcal{K}^c)^{-1}$  est la vitesse de la réaction inverse :

$$\dot{\Omega}_k = \sum_{j=1}^M (v''_{kj} - v'_{kj}) \cdot \left( \mathcal{K}_j^f \prod_{i=1}^N [X_i]^{v'_{ij}} - \mathcal{K}_j^b \prod_{i=1}^N [X_i]^{v''_{ij}} \right). \quad (2.10)$$

L'application de l'approximation de l'état quasi-stationnaire à l'espèce  $X_k$  consiste à fixer son taux de réaction molaire,  $\dot{\Omega}_k$ , à zéro et à calculer sa concentration,  $[X_k]$ , par résolution de l'équation algébrique non linéaire ainsi posée. Cela traduit le fait qu'une espèce AEQS est consommée très rapidement après avoir été produite, et que sa concentration ainsi que son taux de réaction molaire net restent très faibles. L'inconvénient d'une équation non linéaire et, par extension, d'un système d'équations non linéaires pour  $N_{AEQS}$  espèces AEQS est sa méthode de résolution. À chaque pas de temps du solveur, le système devrait être résolu itérativement sans qu'il ne soit possible de s'assurer de la convergence et de l'unicité de la solution. C'est pour cette raison que l'approche choisie ici est celle proposée par Lu et Law [71], baptisée *approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée*.

Les sources possibles de non-linéarité du système d'équations AEQS sont mises en évidence par l'équation 2.10. En considérant indépendamment les réactions directes et inverses, la première à apparaître est la présence de plus d'une espèce AEQS parmi les réactants d'une réaction. Ceci inclut notamment la possibilité pour le coefficient stœchiométrique d'une espèce AEQS d'être supérieur à l'unité. La deuxième source de non-linéarité ne se rencontre que dans les réactions à trois corps. Elle se manifeste quand une espèce AEQS est présente à la fois par l'intermédiaire du troisième corps M et parmi les réactants. Or, comme le remarquent justement Lu et Law, les concentrations des espèces AEQS étant faibles, la fréquence de collision de ces espèces entre elles l'est aussi. Les réactions entre espèces AEQS ont donc une contribution mineure au mécanisme réactionnel et sont susceptibles d'être éliminées à l'étape de réduction. Si toutefois des non-linéarités devaient subsister, Lu et Law proposent de comparer leur contribution aux taux de production et de consommation totaux des espèces AEQS. Au-delà d'un seuil donné, l'identification des espèces AEQS doit être révisée, et en-deçà les non-linéarités peuvent simplement être exclues en annulant le taux d'avancement des réactions incriminées. Dans les deux cas, la première source de non-linéarité est éliminée. Il en va de même pour la deuxième source mentionnée, la contribution des espèces AEQS à la concentration du troisième corps pouvant être négligée. Dans ce travail de thèse, on fait l'hypothèse que le mécanisme squelettique et la liste des espèces AEQS fournis à CHARME sont toujours compatibles avec l'approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée décrite par Lu et Law. Toutes les non-linéarités restantes associées à des réactions entre espèces AEQS sont donc considérées comme ayant une contribution mineure aux taux de production et de consommation de ces espèces, et le taux d'avancement des réactions correspondantes est fixé à zéro. L'hypothèse de Lu et Law justifie aussi que les concentrations des espèces AEQS soient naturellement exclues de la concentration du troisième corps, car non transportées dans le solveur.

Afin de simplifier l'écriture du système AEQS, on sépare dans la suite les réactions directes et inverses des  $M$  réactions réversibles considérées. Les réactions inverses deviennent ainsi des réactions directes, dont la vitesse de réaction, bien que notée  $\mathcal{K}^f$  pour respecter la nomenclature introduite, est bien égale au  $\mathcal{K}^b$  originel. Aussi, parmi les  $N$  espèces du mélange, les  $N_{AEQS}$  premières sont supposées à l'équilibre. Sous ces hypothèses, le taux d'avancement  $\dot{\omega}_j$  d'une réaction  $j$  peut être exprimé comme le produit d'une contribution AEQS et d'une contribution non-AEQS, notée  $\widehat{\omega}_j$  :

$$\dot{\omega}_j = \mathcal{K}_j^f \cdot \prod_{i=1}^N [X_i]^{v'_{ij}} = \left( \prod_{i=1}^{N_{AEQS}} [X_i]^{v'_{ij}} \right) \cdot \left( \mathcal{K}_j^f \cdot \prod_{i=N_{AEQS}+1}^N [X_i]^{v'_{ij}} \right) = \left( \prod_{i=1}^{N_{AEQS}} [X_i]^{v'_{ij}} \right) \cdot \widehat{\omega}_j. \quad (2.11)$$

Le taux de réaction molaire d'une espèce AEQS  $X_k$  peut être écrit :

$$\dot{\Omega}_k = \sum_{j=1}^{2M} (v''_{kj} - v'_{kj}) \widehat{\omega}_j \cdot \left( \prod_{i=1}^{N_{AEQS}} [X_i]^{v'_{ij}} \right) = 0. \quad (2.12)$$

Les non-linéarités étant préalablement traitées, on construit facilement une matrice creuse  $A$  de taille  $N_{AEQS} \times N_{AEQS}$  et un vecteur  $\mathbf{b}$  de longueur  $N_{AEQS}$  en fonction des  $v'_{kj}$ ,  $v''_{kj}$  et  $\widehat{w}_j$ , tels que  $A \cdot x = \mathbf{b}$ , où  $x$  est le vecteur des concentrations des espèces AEQS. On obtient ainsi un système linéaire  $\mathcal{S}_{AEQS}$  pouvant être résolu analytiquement. Pour cela, la méthode de Lu et Law, basée sur la théorie des graphes et particulièrement efficace, est utilisée. Le lecteur est ici invité à consulter [71] pour plus de détails.

Concernant l'efficacité de calcul, un avantage évident de l'intégration de l'approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée est que la résolution du système  $\mathcal{S}_{AEQS}$  peut être préparée en amont d'une simulation. Un outil de pré-traitement, nommé *QSSRG*, a été développé à cette fin. Il permet, à partir d'un mécanisme squelettique, de la liste des espèces transportées et de la liste des espèces AEQS, de générer une routine Fortran de résolution de  $\mathcal{S}_{AEQS}$ , compatible avec le solveur. Les principales entrées de cette routine sont les contributions non-AEQS des taux d'avancement,  $\widehat{w}_j$ . Ils seront calculés en cours de simulation par le modèle de cinétique chimique en fonction des concentrations des espèces transportées, des coefficients de la loi d'Arrhénius pour les réactions directes, ainsi que des données thermodynamiques des espèces transportées et AEQS pour les réactions inverses. Le corps de la routine à proprement parler est constitué de quatre blocs, correspondant aux quatre étapes de résolution de  $\mathcal{S}_{AEQS}$ . Les  $\widehat{w}_j$  introduisant des non-linéarités sont tout d'abord annulés. Puis, la matrice  $A$  et le vecteur  $b$  sont construits selon l'équation (2.12), l'ordre des espèces AEQS étant imposé par la méthode de résolution de Lu et Law. Les opérations de triangularisation de la matrice  $A$  et de calcul des concentrations des espèces AEQS, données par cette même méthode, sont ensuite retranscrites. Il est important de noter que des seuils numériques ont été ajoutés à ces opérations afin d'éviter toute division par zéro en cours de simulation. Enfin, les contributions non-AEQS des taux d'avancement sont multipliés par les contributions AEQS. Les taux d'avancement complets,  $w_j$ , ainsi calculés sont les principales sorties de la routine. Ils seront réutilisés dans le modèle de cinétique chimique pour poursuivre la construction des termes source des espèces transportées. Tout comme pour les corrections de Lindemann et Troe appliquées aux réactions à trois corps, la routine écrite par l'utilitaire *QSSRG* est également capable d'annuler et de multiplier par la contribution des espèces AEQS les composantes de la matrice jacobienne des taux d'avancement par rapport à la température et aux concentrations des espèces transportées. Ceci garantit la compatibilité du modèle de cinétique chimique avec l'utilisation d'un opérateur d'intégration temporelle implicite.

### 2.1.3 Mise en place d'une méthodologie de simulation de réacteur à pression et enthalpie constantes

Afin de valider l'implémentation du modèle de cinétique chimique de CHARME, on veut pouvoir simuler un réacteur homogène à pression et enthalpie constantes (HP). Ce cas-test, très sensible à la cinétique chimique, permet en effet de vérifier l'évolution des grandeurs thermodynamiques d'un mélange réactif sans effet parasite des phénomènes de transport. Facilement mis en œuvre par *Cantera* [48] en 0D, une telle simulation peut cependant se révéler problématique en CFD, si le maillage est fixe, car le volume du domaine de calcul est contraint de varier pour maintenir la pression à sa valeur consigne. Dans ce travail de thèse, on introduit une méthode systématique de simulation de réacteur HP valable en 2D et 3D pour le code CEDRE.

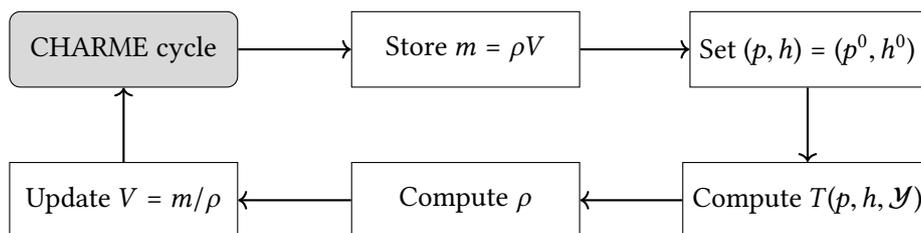


FIGURE 2.1 – Illustration de l'algorithme de simulation d'un réacteur HP

Soient une cellule représentant le réacteur HP à simuler,  $p^0$  la pression,  $\mathcal{Y}^0$  la composition initiale du mélange gazeux maintenu au repos,  $T^0$  sa température initiale et  $h^0$  son enthalpie massique, fonction de  $\mathcal{Y}^0$  et  $T^0$ . Une condition de symétrie est imposée aux faces de la cellule, les flux de masse et d'énergie y sont donc nuls par définition. C'est sous cette hypothèse que le domaine de calcul peut être déformé en volume à masse et enthalpie constantes, sans qu'il ne soit nécessaire de corriger l'aire de ses faces. Dans la méthode développée et illustrée sur la figure 2.1, les termes source des espèces transportées sont intégrés à chaque pas de temps et les variables  $p$ ,  $T$ ,  $\mathcal{Y}$  mises à jour, comme pour n'importe quelle simulation. Une série d'opérations supplémentaires est toutefois effectuée avant le passage au pas de temps suivant. La masse du mélange, produit de la masse volumique  $\rho$  et du volume  $V$  de la cellule, est tout d'abord stockée. La pression et l'enthalpie massique sont ensuite respectivement fixées à  $p^0$  et  $h^0$ , et la température du mélange est calculée par un changement de variable  $(p^0, h^0, \mathcal{Y}) \rightarrow (p^0, T, \mathcal{Y})$ . Enfin,  $\rho$  est actualisée et  $V$  corrigé de façon à ce que la masse du mélange soit égale à sa valeur initialement stockée. La pression et l'enthalpie sont ainsi maintenues à leur valeur consigne tout au long du calcul.

### 2.1.4 Validation de l'implémentation du modèle de cinétique chimique

Afin de valider l'implémentation du modèle de cinétique chimique, deux cas élémentaires ont été mis en œuvre, le réacteur HP et la flamme laminaire de prémélange. Le mécanisme utilisé dans les deux cas est celui de Lu et Law [70] pour la combustion méthane/air. Dans sa version squelettique, ce mécanisme contient 30 espèces et, dans sa version réduite analytiquement (ARC), seulement 19, 11 espèces étant mises à l'équilibre. Une routine de calcul AEQS est également fournie avec les mécanismes. Elle est interfaçable avec *Cantera* grâce au travail d'adaptation de ce code réalisé au Cerfacs.

#### Réacteur HP

Le réacteur HP est modélisé par une unique cellule cubique de 1 mm de côté<sup>1</sup>, selon la méthode présentée précédemment. Un capteur numérique est placé en son centre pour suivre l'évolution temporelle de la température du mélange et estimer son délai d'auto-inflammation  $\tau_a$ . Le mélange gazeux est initialisé à la stœchiométrie. La pression est fixée à 1 bar, la vitesse à 0 m.s<sup>-1</sup> et la température initiale à 1400 K pour limiter le délai d'auto-inflammation et le temps de calcul. La méthode d'intégration temporelle est la méthode implicite de Gear [39] d'ordre 2, avec un pas de temps de 0,1  $\mu$ s pour un temps physique de simulation de 3 ms.

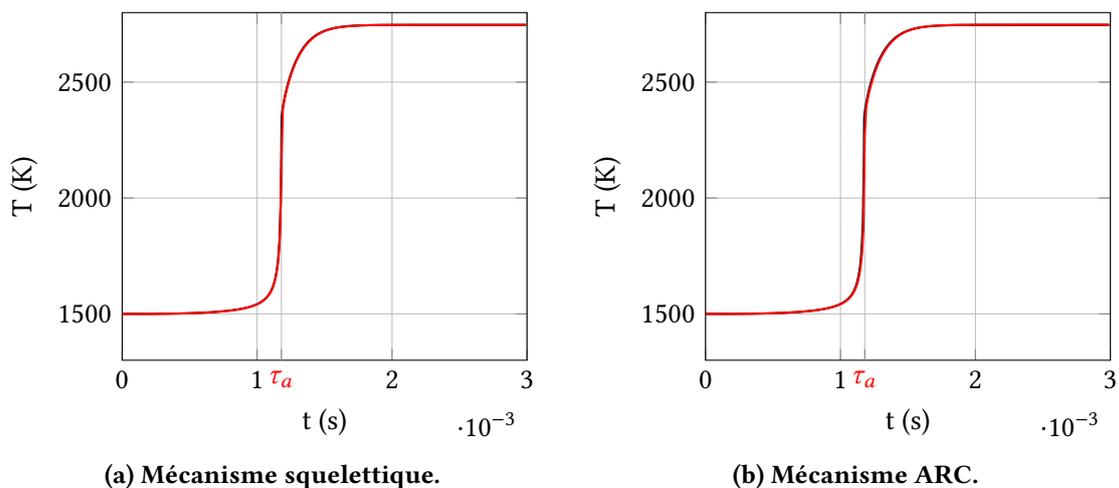


FIGURE 2.2 – Comparaison des profils de température en fonction du temps : *Cantera* (—), *CEDRE* (—).

1. Comme indiqué dans la sous-section 2.1.3, le volume  $V$  du réacteur n'est pas le volume constant de ce cube.

Deux simulations ont été conduites pour le mécanisme squelettique : la première, qui sert de référence, avec *Cantera* et la seconde avec le code CEDRE. Le délai d'auto-inflammation est estimé à chaque fois comme l'instant auquel la dérivée de la température par rapport au temps atteint son maximum. Il aurait été plus correct de déterminer  $\tau_a$  comme l'instant auquel le taux de dégagement de chaleur ou le taux de réaction d'une espèce intermédiaire commence à croître. Cette dernière méthode, qui nécessite la définition d'un seuil de détection, est toutefois plus lourde à mettre en œuvre et ne se justifie guère ici. En effet, plus qu'à la valeur exacte de  $\tau_a$ , on s'intéresse surtout à l'écart éventuel entre les valeurs obtenues grâce aux deux codes de calcul par une même méthode de post-traitement. Les profils de température en fonction du temps sont présentés sur la figure 2.2a, où le délai d'auto-inflammation, égal à 1,18 ms pour *Cantera* et CEDRE, est mis en évidence. On notera le très bon accord entre les profils, montrant que la cinétique chimique est correctement décrite dans CHARME.

Deux simulations ont également été menées pour le mécanisme réduit analytiquement : la première avec *Cantera* et la routine AEQS de référence, la seconde avec le code CEDRE et la routine AEQS générée par l'outil *QSSRG*. Le délai d'auto-inflammation calculé est égal à 1,17 ms pour *Cantera* et à 1,18 ms pour CEDRE, ce qui est très satisfaisant. Compte tenu de ce faible écart, seule la valeur de  $\tau_a$  donnée par CEDRE est reportée sur la figure 2.2b. Les profils de température en fonction du temps présentés sur cette figure sont à nouveau en très bon accord et montrent la justesse de l'intégration de l'approximation de l'état quasi-stationnaire linéarisée sur ce cas de réacteur HP.

### Flamme laminaire de prémélange

La flamme laminaire de prémélange est simulée sur un domaine 1D de 50 mm de longueur. Le maillage est structuré, constitué de 640 cellules et raffiné au niveau du front de flamme ( $dx_{min} = 10 \mu\text{m}$ ). À l'entrée du domaine, un mélange stœchiométrique de gaz frais est injecté par une entrée subsonique à la température de 320 K et à la vitesse de  $31,1 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Cette vitesse est la vitesse de flamme laminaire calculée par *Cantera* pour ce cas, ce qui permet de restreindre les déplacements de la flamme en cours de simulation et de la maintenir dans la portion raffinée du maillage. À la sortie du domaine, une sortie subsonique à 1 bar, associée à des conditions acoustiques de non-réflexion, est utilisée. L'état initial est donné par le mélange de gaz frais injecté dans la première moitié du domaine, et par son état à l'équilibre thermodynamique à enthalpie et pression constantes dans la seconde moitié. La flamme est ainsi fixée dans la zone raffinée au centre du maillage. La méthode d'intégration temporelle est la méthode implicite de Gear d'ordre 2, avec un pas de temps de  $0,1 \mu\text{s}$  pour un temps physique de simulation de 10 ms nécessaire à l'obtention d'une solution stationnaire. Les flux hyperboliques sont calculés par un schéma HLLC [103] avec correction bas Mach [95], un schéma MUSCL [50] d'ordre 2 est utilisé pour la méthode de discrétisation spatiale.

Contrairement au réacteur HP, la flamme laminaire de prémélange est sensible aux phénomènes de transport. Il est donc nécessaire de s'assurer que leur description est équivalente dans *Cantera* et CEDRE afin de pouvoir comparer les résultats des deux codes. Pour cela, la viscosité du mélange est exceptionnellement calculée dans CEDRE par la moyenne de Wilke [109], et les flux de diffusion des espèces, introduits au chapitre 1, sont évalués en fonction des gradients de fractions molaires :

$$\mathbf{J}_k = -\rho Y_k \left[ D_k \frac{M_k}{M} \nabla X_k + \left( \sum_{k=1}^N D_k \frac{M_k}{M} \nabla X_k \right) \right]. \quad (2.13)$$

Les développements faits par Boucher dans *Cantera* au cours de son travail de thèse [8] permettent d'y calculer les coefficients de diffusion des espèces comme dans CEDRE, en fonction de la viscosité du mélange et du nombre de Schmidt, constant et identique pour toutes les espèces. La conductivité thermique est, elle, déterminée en fonction de la capacité calorifique du mélange et du nombre de Prandtl, constant et identique pour toutes les espèces. Les nombres de Schmidt et de Prandtl sont ici tous deux fixés à 0,7. Il faut toutefois noter que la valeur retenue importe peu tant qu'elle est identique entre les deux codes. Avec ces adaptations, seules les viscosités des espèces sont déterminées par des méthodes différentes. Dans *Cantera*, elles sont évaluées directement à partir de paramètres de la théorie cinétique des gaz,

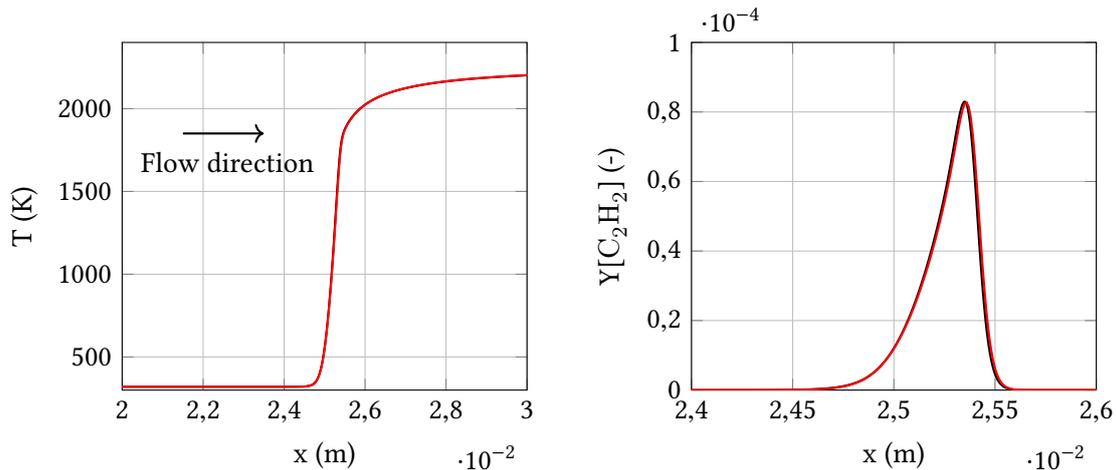


FIGURE 2.3 – Comparaison des profils de température et de fraction massique de C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> en fonction de la position dans le domaine de calcul pour le mécanisme squelettique : *Cantera* (—), CEDRE (—).

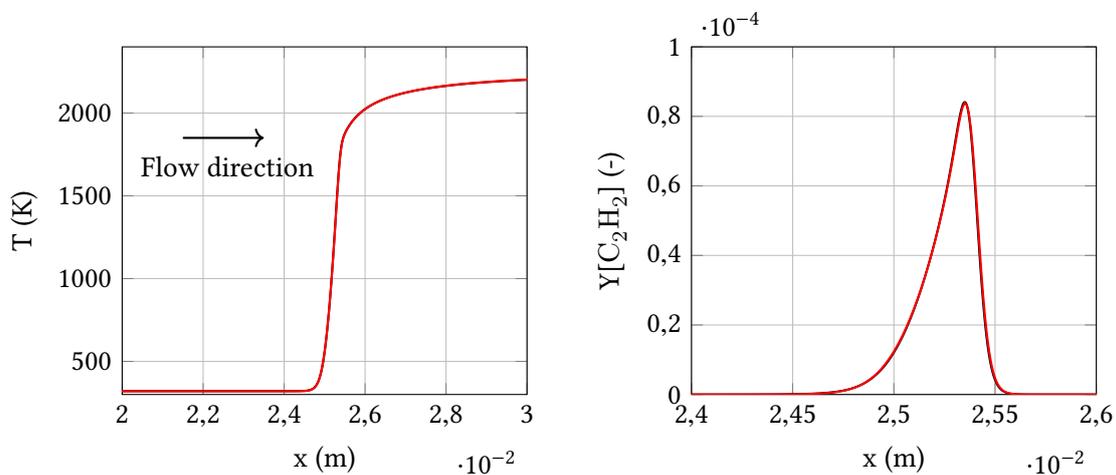


FIGURE 2.4 – Comparaison des profils de température et de fraction massique de C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> en fonction de la position dans le domaine de calcul pour le mécanisme ARC : *Cantera* (—), CEDRE (—).

alors que dans CEDRE, elles le sont uniquement en fonction de la température par l'intermédiaire d'une loi de Sutherland [99]. Ainsi, bien que les paramètres de cette loi soient obtenus pour chaque espèce par régression d'une table générée à l'aide de *Cantera*, des écarts peuvent parfois être constatés. Ces écarts peuvent expliquer les discordances résiduelles sur la vitesse de flamme laminaire reportées dans la suite. C'est ce qu'ont pu montrer des cas tests, non présentés ici, où les différences entre les viscosités données par une loi de Sutherland et par la théorie cinétique des gaz ont été amplifiées.

Pour ce cas de flamme laminaire de prémélange, deux simulations ont été menées pour chaque mécanisme, l'une avec *Cantera*, qui sert à nouveau de référence, et l'autre avec le code CEDRE. La comparaison des résultats obtenus est alors basée sur trois grandeurs. La première, usuelle en cinétique chimique, est la vitesse de flamme laminaire déterminée par l'équation (2.14) :

$$s_L = - \frac{1}{\rho^u \cdot (Y_f^u - Y_f^b)} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \dot{\omega}_f dx, \quad (2.14)$$

avec  $\rho^u$  la masse volumique du mélange injecté,  $Y_f^u$  et  $Y_f^b$  les fractions massiques de combustible dans

le mélange respectivement à l'entrée et à la sortie du domaine, et  $\dot{\omega}_f$  le terme source de masse du combustible. Les deux autres grandeurs à comparer sont la température du mélange et la fraction massique d'acétylène dans celui-ci. Pour la fraction massique de  $C_2H_2$ , on s'intéresse en particulier à son profil dans la zone de flamme, où l'acétylène, en tant qu'espèce intermédiaire, est produit puis totalement consommé. C'est d'ailleurs cette dynamique singulière qui en fait une espèce propice à la validation de l'extension du modèle de cinétique chimique de CHARME.

	Mécanisme squelettique			Mécanisme ARC		
	<i>Cantera</i>	CEDRE	Écart	<i>Cantera</i>	CEDRE	Écart
$s_L$ [cm.s <sup>-1</sup> ]	31,1	31,3	0,64 %	31,2	31,3	0,32 %

TABLE 2.1 – Vitesses de flamme laminaire pour les mécanismes squelettiques et ARC.

Les vitesses de flamme laminaire calculées pour chaque simulation, ainsi que les écarts correspondants entre *Cantera* et CEDRE, sont reportés dans le tableau 2.1. Les profils de température et de fraction massique d'acétylène sont présentés pour le mécanisme squelettique et le mécanisme réduit analytiquement dans les figures 2.3 et 2.4 respectivement. Pour les trois grandeurs d'intérêt, l'accord entre les deux codes de calcul est très satisfaisant, ce qui montre la validité du modèle de cinétique chimique implémenté.

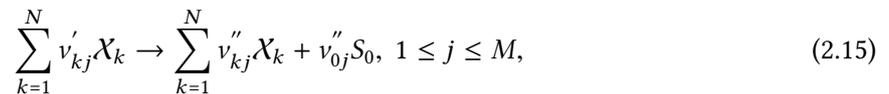
## 2.2 Explicitation du terme source de nucléation de suie

Comme évoqué en introduction, pour les modèles de suie détaillés, la nucléation des particules est décrite dans un mécanisme réactionnel par la dimérisation d'un PAH [75] ou plus généralement par la croissance irréversible d'un ensemble de PAH [23, 92]. On cherche ici à expliciter le calcul du terme source de nucléation de suie, à partir d'un tel mécanisme, dans le contexte particulier du couplage Euler-Lagrange.

### 2.2.1 Calcul générique du terme source de nucléation

Soit un mélange constitué de deux phases. La première, gazeuse, est composée de  $N$  espèces, et la seconde, solide, des particules de suie. On désigne par  $S_0$  l'ensemble des nouvelles particules formées à chaque pas de temps, toutes identiques ici, assimilable à une unique espèce chimique. Sous l'hypothèse de phase dispersée, qui implique que la fraction volumique de la phase solide reste très petite devant 1, on rappelle que seule la phase gazeuse est transportée dans le solveur eulérien CHARME. La phase dispersée est, elle, modélisée dans le solveur lagrangien SPARTE.

Avec les notations déjà introduites, on considère  $M$  réactions irréversibles de nucléation de la forme suivante :



où  $v''_{0j}$  est le coefficient stoechiométrique de l'espèce de nucléation  $S_0$  dans la réaction  $j$ . Le taux d'avancement  $\dot{w}_j$  de chaque réaction est calculé uniquement en fonction de la température et de la composition de la phase gazeuse par l'équation (2.16) :

$$\dot{w}_j = \mathcal{K}_j^f \prod_{i=1}^N [X_i]^{v'_{ij}}. \quad (2.16)$$

Le terme source de nucléation des particules,  $\dot{\omega}_0$ , est donné par l'équation (2.17), où  $\mathcal{M}_0$  est la masse molaire des particules naissantes. Il décrit le transfert de masse de la phase gazeuse vers la phase dispersée,

i.e. de CHARME vers SPARTE.

$$\dot{\omega}_0 = \mathcal{M}_0 \sum_{j=1}^M v_{0j}'' \cdot \dot{w}_j. \quad (2.17)$$

Un terme source de masse,  $\dot{\omega}_k$ , est évidemment calculé pour chaque espèce consommée pour former les particules :

$$\dot{\omega}_k = -\mathcal{M}_k \sum_{j=1}^M v_{kj}' \cdot \dot{w}_j, \quad (2.18)$$

avec, par définition :

$$\sum_{k=1}^N \dot{\omega}_k + \dot{\omega}_0 = 0. \quad (2.19)$$

Ainsi, la masse totale est théoriquement conservée dans le code CEDRE.

Au cours d'un cycle CEDRE, le terme source de nucléation et les termes sources des espèces consommées sont calculés simultanément par le modèle de cinétique chimique de CHARME. Toutefois, seuls les termes sources des espèces sont intégrés pendant le cycle.  $\dot{\omega}_0$  sera intégré séparément par SPARTE au cycle suivant, comme indiqué au chapitre 1 dans la description de l'algorithme de couplage. Il est important de noter que l'intégration faite dans SPARTE sera explicite d'ordre 1 quelle que soit la méthode d'intégration temporelle, multi-étape et/ou implicite, choisie dans CHARME, ce qui est une source possible de non-conservation de la masse. La cinétique chimique imposant un pas de temps très réduit, l'influence de ce biais est néanmoins minime. Aucune aberration n'a ainsi été observée pour les simulations menées dans ce travail de thèse.

Pour aller plus loin, le transport de l'espèce fictive  $S_0$  dans CHARME, avec des propriétés à définir, pourrait permettre de supprimer toute perte de conservativité. Sa masse serait directement transférée vers SPARTE à chaque fin de cycle CEDRE et réinitialisée, au prix d'une augmentation du coût de calcul. Cependant, pour les méthodes d'intégration temporelle implicite mises en œuvre dans la suite, le pré-conditionnement du système à résoudre ne garantit pas non plus la conservation exacte de la masse, qui dépend de la convergence de l'algorithme GMRES. C'est pour cela que cette piste n'a pas été exploitée.

Une méthode de splitting d'opérateur, dans laquelle les termes source des espèces de nucléation seraient intégrés dans CHARME par un schéma explicite d'ordre 1 indépendamment des autres déséquilibres, assurerait la conservation de la masse, à condition de pouvoir considérer l'influence de la renormalisation éventuelle des fractions massiques sur  $\dot{\omega}_0$ . Compte tenu de l'absence d'anomalies sans splitting, elle n'a néanmoins pas été testée. On remarquera tout de même que l'utilisation du splitting d'ordre 1 de Lie [104], a priori suffisant avec les pas de temps utilisés, n'entraînerait pas de surcoût dans l'évaluation des flux, contrairement au transport de l'espèce  $S_0$ .

Dans ce travail de thèse, toutes les particules formées lors de la nucléation sont identiques. En définissant plusieurs classes de particules naissantes,  $S_i$ , assimilables chacune à des espèces chimiques, il serait aussi possible de calculer les termes sources de nucléation et des espèces consommées pour chacune selon la même procédure que pour  $S_0$ .

## 2.2.2 Application à la nucléation par le modèle sectionnel DLR

Afin de décrire la nucléation des particules de suie, le modèle sectionnel développé par le DLR a été choisi pour les raisons suivantes :

- Le mécanisme réactionnel utilisé est un mécanisme squelettique à 43 espèces seulement, 42 sans l'argon qui ne sera pas pris en compte dans les simulations menées ici. Il est adapté à la combustion des hydrocarbures légers jusqu'au toluène  $C_7H_8$ , et peut être étendu à la combustion du n-Décane et de l'isooctane [4] pour de futures applications.

- L'approximation de l'état quasi-stationnaire *linéarisée* peut être mise en œuvre à partir du mécanisme squelettique sans étape préalable de réduction.
- La modélisation des PAH est détaillée, compacte car réduite à 6 espèces, et a été éprouvée sur plusieurs configurations [23, 24, 49], y compris la configuration de complexité aéronautique FIRST.

En accord avec les travaux de Blacha [6] et Eberle [23] présentés en introduction, on considère trois sections de PAH et les radicaux PAH\* associés, représentant un ensemble d'espèces chimiques ayant une masse molaire de 0,1 à 0,8 kg.mol<sup>-1</sup>. La définition des sections est illustrée sur la figure 2.5, où un exemple de molécule est donné pour chacune.

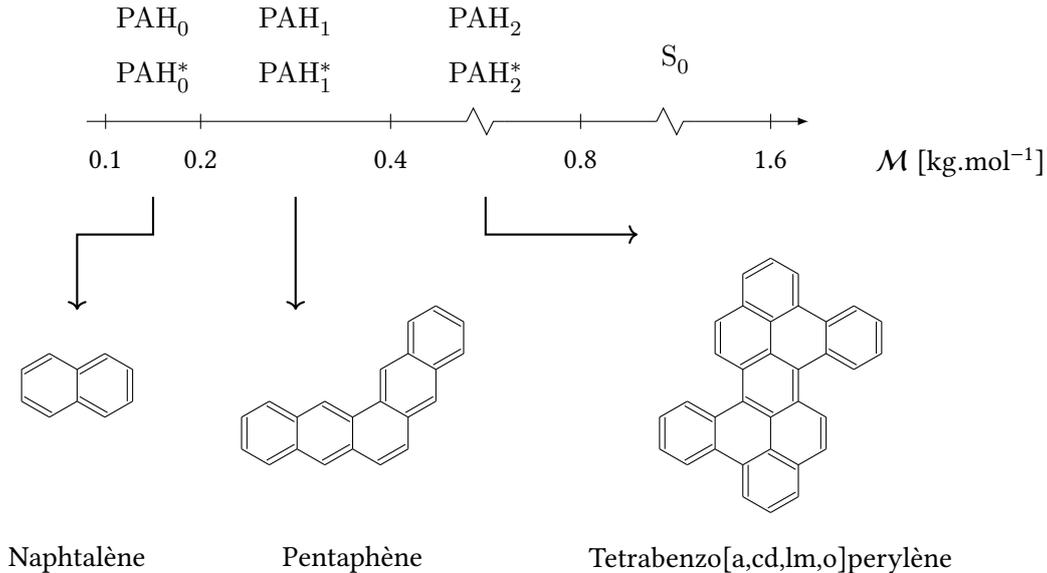


FIGURE 2.5 – Définition des sections de PAH et PAH<sup>\*</sup>.

La masse molaire et la composition atomique moyennes de chaque section, ainsi que leur diamètre de collision sont reportés dans le tableau 2.2. La masse molaire  $y$  est déduite de la définition des sections. Leur composition atomique est déterminée par régression sur un ensemble de 43 espèces de référence, déjà utilisé par Blacha [6]. Le diamètre de collision  $d_{coll}$  est calculé par l'équation (2.20) [34], où  $n_C$  est le nombre moyen d'atomes de carbone de la section :

$$d_{coll} = 1.395\sqrt{2n_C} \text{ [\AA]}. \quad (2.20)$$

La composition atomique moyenne et le diamètre de collision des sections, recalculés dans ce travail de thèse, diffèrent des valeurs indiquées par Blacha dans [5]. Il faut toutefois noter que le catalogue d'espèces considéré n'est pas le même que dans [6]. Par ailleurs, les valeurs de  $d_{coll}$  données dans le tableau 2.2 sont en meilleur accord avec les diamètres de Lennard-Jones des espèces de référence, disponibles dans [88].

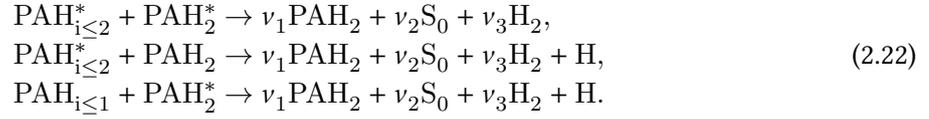
L'enthalpie de formation, la capacité calorifique massique et la viscosité des sections sont déterminées par extrapolation de celles des espèces de référence [88, 113], comme expliqué dans [6, 23]. Les PAH et PAH\* étant des espèces minoritaires, ces grandeurs n'ont toutefois que peu d'influence sur celles du mélange.

Pour la nucléation des particules, on ajoute une septième section, définie sur la figure 2.5 et identique à la première section du modèle de suie du DLR. Elle est appelée S<sub>0</sub>, conformément aux notations précédemment introduites. Sa masse molaire,  $\mathcal{M}_0$ , est prise égale à 1,2 kg.mol<sup>-1</sup> et sa composition atomique déterminée par le rapport des nombres d'atomes d'hydrogène et de carbone selon l'équation (2.21) [4,

6] :

$$(H/C)_0 = 0.4405 \mathcal{M}_0^{-0.10524}, \quad (2.21)$$

avec  $\mathcal{M}_0$  en  $\text{kg.mol}^{-1}$ . On rappelle que  $S_0$  n'est pas transportée dans le solveur CHARME et ne sert qu'à la construction des réactions de nucléation. Ces réactions, données par Eberle, sont :



Leurs coefficients stœchiométriques et constantes cinétiques sont déterminés comme détaillé dans [4, 6]. Les efficacités de collision sont reprises de [23] sans modification.

	$\mathcal{M}$ [ $\text{kg.mol}^{-1}$ ]	$n_C$ [-]	$n_H$ [-]	$d_{coll}$ [Å]
<b>Molécules</b>				
PAH <sub>0</sub>	0,150	11,67	9,71	6,74
PAH <sub>1</sub>	0,300	23,82	13,84	9,63
PAH <sub>2</sub>	0,600	48,10	22,09	13,7
<b>Radicaux</b>				
PAH <sub>0</sub> <sup>*</sup>	0,149	11,67	8,71	6,74
PAH <sub>1</sub> <sup>*</sup>	0,299	23,82	12,84	9,63
PAH <sub>2</sub> <sup>*</sup>	0,599	48,10	21,09	13,7

TABLE 2.2 – Masse molaire, composition atomique et diamètre de collision des sections de PAH et PAH\*.

Les autres réactions d'évolution des sections mises en place par Blacha et Eberle ne sont pas présentées dans ce travail de thèse. Le lecteur est invité à consulter [23] pour plus d'informations. On notera seulement que les constantes cinétiques sont reprises sans modification, et les coefficients stœchiométriques calculés par les mêmes méthodes.

## 2.3 Implémentation d'un algorithme d'injection de particules de suie

Comme rappelé précédemment, le terme source de nucléation de particules de suie calculé par CHARME est transmis à SPARTE à chaque cycle. On souhaite maintenant mettre en place dans ce solveur un algorithme d'injection des particules numériques, nécessaires à la description lagrangienne de la phase dispersée.

### 2.3.1 Choix des propriétés physiques des particules de suie injectées

Les particules injectées sont modélisées par des sphères solides. Leur masse molaire est imposée par le modèle sectionnel de nucléation, soit  $\mathcal{M}_0 = 1,2 \text{ kg.mol}^{-1}$ . Leur densité,  $\rho_0$ , est constante et égale à  $1,8 \text{ g.cm}^{-3}$  [114]. On notera ici que les valeurs de  $\rho_0$  rencontrées dans la littérature sont généralement comprises entre  $1,7$  et  $2,0 \text{ g.cm}^{-3}$ . Sous ces hypothèses, le diamètre des particules injectées,  $d_0$ , est déterminé par l'équation (2.23) :

$$d_0 = \left( \frac{6}{\pi} \frac{\mathcal{M}_0}{N_a \rho_0} \right)^{1/3} = 1,28 \text{ nm}, \quad (2.23)$$

et leur masse,  $m_0$ , par l'équation (2.24) :

$$m_0 = \frac{\pi}{6} \rho_0 d_0^3 = 1,98 \times 10^{-24} \text{ kg}, \quad (2.24)$$

où  $N_a$  est la constante d'Avogadro.

Pour assurer le calcul des termes sources de rétroaction de la phase dispersée vers la phase gazeuse, la capacité calorifique massique des particules,  $c$ , doit également être précisée : elle est prise égale à celle utilisée dans les travaux de Blacha [6].

### 2.3.2 Description de l'algorithme d'injection de particules de suie

L'algorithme mis en place dans le solveur SPARTE a pour but d'injecter la masse de suie produite en chaque cellule dans le solveur CHARME, en la répartissant sur un ensemble de  $n$  particules numériques de poids variables  $w_i$ <sup>2</sup>. Afin de le décrire, on introduit en premier lieu  $w_m$  et  $w_M$ , les poids numériques minimum et maximum des particules injectées, ces poids restant à définir. On note  $\Delta t$  le pas de temps et  $\mathcal{R}_S$  le réservoir de masse de suie dans chaque cellule, dont le rôle dans l'algorithme est de stocker la masse de suie non injectable.

À chaque début de cycle SPARTE et dans chaque cellule, la masse de suie à injecter,  $m$ , est donnée par l'intégrale du terme source de nucléation, à laquelle est ajoutée  $\mathcal{R}_S$  :

$$m = \dot{\omega}_0 \cdot \mathcal{V} \Delta t + \mathcal{R}_S, \quad (2.25)$$

avec  $\mathcal{V}$  le volume de la cellule. Si le nombre de particules physiques  $m/m_0$  est inférieur à  $w_m$ ,  $m$  est stockée dans  $\mathcal{R}$  et aucune particule n'est injectée. Sinon, le nombre de particules numériques potentielles est déterminé par l'équation 2.26 :

$$n = \left\lceil \frac{m}{m_0 w_M} \right\rceil. \quad (2.26)$$

Deux modes d'injection, illustrés sous forme graphique sur la figure 2.6 pour plus de clarté, sont ensuite possibles :

1. **Mode 1** : Une particule numérique est créée si son poids,

$$w_1 = \min \left( \frac{m}{m_0}, w_M \right), \quad (2.27)$$

est supérieur à  $w_m$ . La quantité  $w_1 m_0$  est alors retirée de la masse de suie à injecter, et l'algorithme poursuit avec la nouvelle valeur de  $m$ . Sinon,  $m$  est stockée dans  $\mathcal{R}_S$  et la procédure s'arrête.  $n$  particules sont donc injectées au maximum.

2. **Mode 2** :  $n$  particules numériques identiques de poids

$$w_2 = \frac{m}{m_0 n} \quad (2.28)$$

sont créés et  $\mathcal{R}_S$  est mis à zéro.

Dans ce travail de thèse, le **Mode 1** est utilisé pour des simulations de flammes stationnaires. Le poids minimum des particules est alors fixé à  $w_M/1000$ . Ce procédé, qui permet de limiter l'injection de particules numériques non significatives, se justifie par l'intérêt pour une solution uniquement stationnaire du système simulé. Le **Mode 2** est utilisé pour des simulations LES instationnaires. Dans ce cas, le poids minimum des particules devrait en théorie être fixé à 0. En pratique, il est pris égal à 1, toute

2. Pour rappel, le poids d'une particule numérique est le nombre de particules physiques, sans dimension, qu'elle représente.

contribution inférieure étant de toute évidence très négligeable. Le poids maximum est déterminé en fonction de  $\Delta t$  pour les deux modes :

$$w_M = \alpha_M \Delta t, \quad (2.29)$$

où  $\alpha_M$  est un facteur empirique. Le nombre de particules injectées pour une simulation donnée est ainsi indépendant du pas de temps choisi, à condition que le terme source de nucléation reste inchangé. Dans la suite,  $\alpha_M$  est fixé à  $3 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$ .

Les propriétés physiques des particules injectées ont été détaillées précédemment. Leur température et leur vitesse sont par ailleurs prises égales à celle de la phase gazeuse, et leur position dans la cellule déterminée aléatoirement.

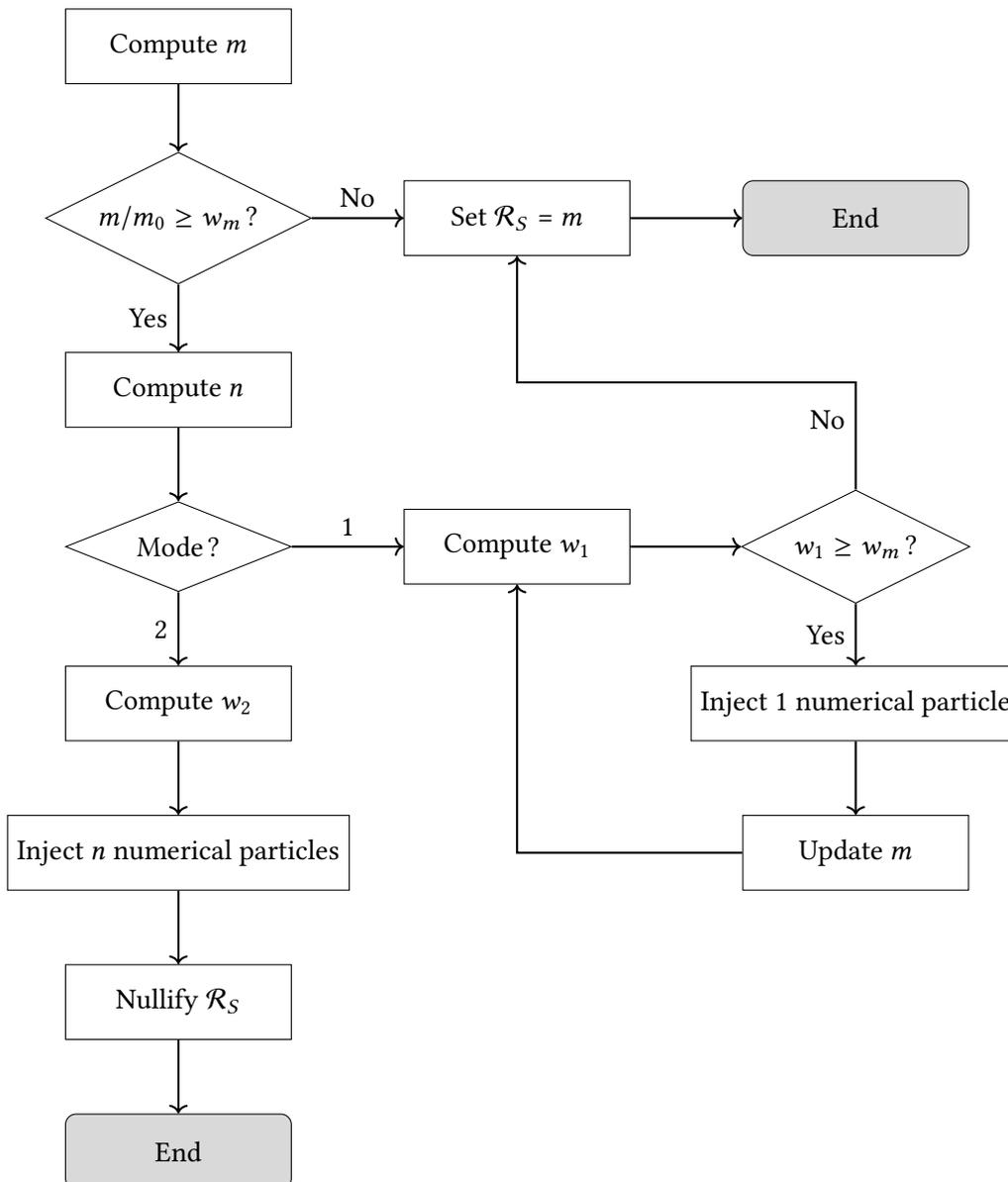


FIGURE 2.6 – Description de l'algorithme d'injection de particules.

### **Bilan**

Dans ce chapitre, on a étendu le modèle de cinétique chimique du solveur CHARME au traitement des mécanismes détaillés ou squelettiques et réduits analytiquement. Son implémentation a alors été validée avec succès sur deux cas élémentaires, un réacteur HP et une flamme laminaire de prémélange. On a explicité le calcul du terme source de suie par un mécanisme réactionnel de nucléation quelconque, puis dans le cas particulier du modèle sectionnel de PAH développé au DLR et repris dans ce travail de thèse. On a enfin mis en place un algorithme d'injection de particules numériques dans le solveur SPARTE à partir de ce terme source, qui assure le couplage entre la phase gazeuse et la phase dispersée. Il est maintenant nécessaire de modéliser l'évolution de ces particules numériques.



---

## Chapitre 3

# Mise en place de sous-modèles d'évolution chimique de particules de suie en approche lagrangienne

---

L'objectif de ce chapitre est de décrire la mise en place d'un ensemble de sous-modèles d'évolution chimique des particules de suie, ces particules étant en interaction avec les espèces de la phase gazeuse. Pour cela, on propose tout d'abord une formulation générique d'un sous-modèle d'évolution chimique compatible avec les sous-modèles de la littérature. On particularise ensuite cette formulation à l'ensemble des sous-modèles identifiés en introduction : croissance en surface par addition de  $C_2H_2$ , oxydation par  $O_2$  et  $OH$ , et condensation des PAH. Enfin, on propose un traitement spécifique pour la fin de vie des espèces gazeuses impliquées dans l'évolution des particules de suie, ainsi qu'un traitement spécifique pour celle des particules.

### Sommaire

---

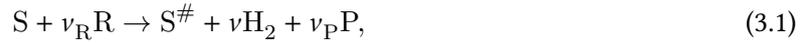
3.1	Formulation d'un modèle générique d'évolution chimique . . . . .	44
3.2	Application aux sous-modèles d'évolution chimique de la littérature . . . . .	45
3.2.1	Addition de $C_2H_2$ . . . . .	45
3.2.2	Oxydation par $O_2$ . . . . .	46
3.2.3	Oxydation par $OH$ . . . . .	47
3.2.4	Condensation des PAH . . . . .	47
3.3	Traitement de la fin de vie d'un réactant gazeux . . . . .	48
3.3.1	Adaptation préliminaire de l'opérateur d'intégration temporelle eulérien. . . . .	48
3.3.2	Limitation des sources de masse par espèce et par cellule . . . . .	48
3.4	Traitement de la fin de vie d'une particule . . . . .	49
3.4.1	Limitation des sources de masse par particule. . . . .	49
3.4.2	Choix du critère de suppression des particules de suie. . . . .	50
3.5	Cas-test 0D . . . . .	50

---

Comme indiqué au chapitre 1, les particules de petite taille telles que les suies se comportent comme des traceurs : leur vitesse et leur température sont identiques à celles de la phase porteuse. Ce chapitre se concentre ainsi uniquement sur l'évolution, au cours de l'étape de transport du solveur SPARTE, de leur taille et de leur masse par des processus chimiques.

### 3.1 Formulation d'un modèle générique d'évolution chimique

Soit une particule de suie sphérique S, qui par essence est également une molécule. Cette particule, de diamètre  $d$ , est localisée dans la cellule  $c$  (de volume  $\mathcal{V}_c$ ) et contenue dans une particule numérique de poids  $w_i$ . On considère la réaction d'évolution générique suivante, compatible avec les sous-modèles à mettre en œuvre :



où  $S^\#$  est le nouvel état – fictif – de la particule après sa réaction avec R, et P le produit de la réaction. Le terme supplémentaire  $\nu_{H_2}$  est uniquement introduit afin de garantir la conservation de la masse pour le couplage de la phase dispersée avec la phase gazeuse.

R et P, ainsi que leurs coefficients stœchiométriques, sont imposés par le sous-modèle d'évolution et invariants au cours d'une simulation. Le nouvel état de la particule et  $\nu$  doivent en revanche être déterminés à chaque pas de temps. Pour cela, la masse molaire  $\mathcal{M}^\#$  de  $S^\#$  est calculée itérativement par conservation de l'élément carbone :

$$\mathcal{M}^\# = [n_C(S) + \nu_R n_C(R) - \nu_P n_C(P)] \cdot [\mathcal{M}_C + H/C(\mathcal{M}^\#) \mathcal{M}_H], \quad (3.2)$$

avec  $H/C$  le rapport des nombres d'atomes d'hydrogène et de carbone en fonction de la masse molaire, donnée par l'équation (2.21), et  $n_C(S)$  le nombre d'atomes de carbone contenus dans S, défini par l'équation (3.3) :

$$n_C(S) = \frac{N_a}{\mathcal{M}_C + H/C(\mathcal{M}) \mathcal{M}_H} \cdot \frac{\pi}{6} \rho_0 d^3. \quad (3.3)$$

Le coefficient stœchiométrique  $\nu$  est déduit par conservation de la masse :

$$\nu = \frac{\mathcal{M} - \mathcal{M}^\# + \nu_R \mathcal{M}_R - \nu_P \mathcal{M}_P}{2\mathcal{M}_H}. \quad (3.4)$$

Le taux d'avancement de la réaction (3.1) est déterminé comme au chapitre 1 par l'équation (3.5).

$$\dot{w} = \mathcal{K}^f [R]^{\nu_R} \underbrace{\frac{1}{N_a \mathcal{V}_c}}_{\text{Concentration molaire apparente de S}}. \quad (3.5)$$

La vitesse de réaction  $\mathcal{K}^f$  ne dépend toutefois plus seulement de la température de la phase gazeuse, mais aussi de la taille de S et éventuellement de la concentration des espèces selon le sous-modèle d'évolution. Le terme source de masse de la particule, dictant son nouvel état réel, et ceux des réactifs gazeux sont donnés par l'équation (3.6) :

$$\dot{w}_S = (\mathcal{M}^\# - \mathcal{M}) \dot{w} \quad \left| \quad \begin{array}{l} \text{Particule} \\ \text{Espèces gazeuses} \end{array} \right. \quad \begin{pmatrix} \dot{w}_R \\ \dot{w}_{H_2} \\ \dot{w}_P \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\nu_R \mathcal{M}_R \\ \nu \mathcal{M}_{H_2} \\ \nu_P \mathcal{M}_P \end{pmatrix} \dot{w}, \quad (3.6)$$

avec, par définition :

$$\dot{\omega}_S + \dot{\omega}_R + \dot{\omega}_{H_2} + \dot{\omega}_P = 0. \quad (3.7)$$

Le terme source de masse total de la particule S, noté  $\dot{\omega}_{tot,S}$  est la somme des sources de masse calculées pour chaque sous-modèle. On en déduit le nouveau diamètre  $d^\#$  de S par l'équation (3.8), en faisant l'hypothèse que sa sphéricité est conservée au cours de l'ajout ou du retrait de masse :

$$d^\# = \left( d^3 + \frac{6}{\pi \rho_0} \dot{\omega}_{tot,S} \mathcal{V}_c \Delta t \right)^{1/3}. \quad (3.8)$$

S n'étant qu'une des  $w_i$  particules identiques contenue dans une particule numérique de la cellule  $c$ , les termes sources de masse des espèces gazeuses sont multipliés par  $w_i$ , avant d'être finalement sommés sur l'ensemble des particules numériques localisées dans  $c$ . Ces sources de masse, qui seront intégrées dans le solveur CHARME au cycle CEDRE suivant, assurent le couplage de la phase dispersée à la phase gazeuse.

## 3.2 Application aux sous-modèles d'évolution chimique de la littérature

Quatre processus chimiques sont communément retenus pour modéliser l'évolution des particules de suie, comme évoqué en introduction. On explicite ici la réaction (3.1) mise en œuvre pour chacun d'entre eux dans ce travail de thèse, ainsi que le calcul de sa vitesse de réaction  $\mathcal{K}^f$ .

### 3.2.1 Addition de $C_2H_2$

Version de Kazakov		$\mathcal{K} = AT^\beta \exp(-E_a/\mathcal{R}T)$		
No.	Réaction	A	$\beta$	$E_a$
1	S - H + H $\leftrightarrow$ S* + H <sub>2</sub>	$2,5 \times 10^{14}$		66,9
		$3,9 \times 10^{12}$		39,0
2	S* + H $\rightarrow$ S - H	$1,0 \times 10^{14}$		
3	S* + C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> $\rightarrow$ S - H + H	$8,4 \times 10^{11}$	0,4	35,1
4	S* + O <sub>2</sub> $\rightarrow$ products	$2,2 \times 10^{12}$		31,3
Version de Blanquart		$\mathcal{K} = AT^\beta \exp(-E_a/\mathcal{R}T)$		
No.	Réaction	A	$\beta$	$E_a$
1	S - H + H $\leftrightarrow$ S* + H <sub>2</sub>	$1,0 \times 10^8$	1,8	68,42
		$8,68 \times 10^4$	2,36	25,46
2	S - H + OH $\leftrightarrow$ S* + H <sub>2</sub> O	$6,72 \times 10^1$	3,33	6,09
		$6,44 \times 10^{-1}$	3,79	27,96
3	S - H $\leftrightarrow$ S* + H	$1,13 \times 10^{16}$	-0,06	476,05
		$4,17 \times 10^{13}$	0,15	
4	S* + C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> $\rightarrow$ S - H + H	$2,52 \times 10^9$	1,77	13,54
5	S* + O <sub>2</sub> $\rightarrow$ products	$2,2 \times 10^{12}$		31,3

**TABLE 3.1 – Réactions et constantes cinétiques du mécanisme HACA.** S\* est un site radicalaire de la particule S formé à partir d'un site S - H. Les constantes cinétiques des réactions inverses sont indiquées en dessous de celles des réactions directes pour chaque réaction réversible. Unités : cm<sup>3</sup>, mol, s, kJ.

La croissance en surface des particules par addition de  $C_2H_2$ , représentée par la réaction globale (3.9), est modélisée par le mécanisme HACA [35] :



Deux versions du mécanisme sont utilisées dans ce travail de thèse : la version de Kazakov, particulièrement adaptée à la simulation de flammes laminares de prémélange, et la version de Blanquart pour toute autre simulation.

### Version de Kazakov

Avec le mécanisme réactionnel de Kazakov [57], présenté dans le tableau 3.1, la vitesse de la réaction (3.9) est calculée par l'équation (3.10) :

$$\mathcal{K}^f = \alpha \chi_s s \mathcal{K}_3^f. \quad (3.10)$$

$\alpha$  est la fraction de sites radicalaires  $S^*$  disponibles à la surface de la particule pour une réaction. Elle est déterminée, pour une flamme laminaire de prémélange, en fonction de la température adiabatique de flamme  $T_{ad}$  [57] :

$$\alpha = \frac{1}{2} \left[ 1 + \tanh \left( \frac{8168}{T_{ad}} - 4.57 \right) \right]. \quad (3.11)$$

$\chi_s$  est la densité de sites radicalaires à la surface de S, en  $m^{-2}$ , obtenue par application de l'approximation de l'état quasi-stationnaire à  $S^*$  :

$$\chi_s = \frac{\mathcal{K}_1^f [H]}{\mathcal{K}_1^b [H_2] + \mathcal{K}_2^f [H] + \mathcal{K}_3^f [C_2H_2] + \mathcal{K}_4^f [O_2]} \chi_{S-H}, \quad (3.12)$$

avec  $\chi_{S-H} = 2,3 \times 10^{19} m^{-2}$ .  $\mathcal{K}_j^{f/b}$  est la vitesse de la réaction directe ou inverse  $j$ , fonction de  $T_g$ , et  $s$  la surface de la particule S.

### Version de Blanquart

Avec le mécanisme réactionnel de Blanquart [7], aussi présenté dans le tableau 3.1, la vitesse de la réaction (3.9) est calculée par l'équation (3.13) :

$$\mathcal{K}^f = \chi_s s \mathcal{K}_4^f. \quad (3.13)$$

$\chi_s$  est toujours obtenue par application de l'approximation de l'état quasi-stationnaire aux sites radicalaires  $S^*$  :

$$\chi_s = \frac{\mathcal{K}_1^f [H] + \mathcal{K}_2^f [OH] + \mathcal{K}_3^f}{\mathcal{K}_1^b [H_2] + \mathcal{K}_2^b [H_2O] + \mathcal{K}_3^b [H] + \mathcal{K}_4^f [C_2H_2] + \mathcal{K}_5^f [O_2]} \chi_{S-H}, \quad (3.14)$$

avec  $\chi_{S-H} = 1,7 \times 10^{15} cm^{-2}$ . On notera que ceci revient à fixer  $\alpha = 0,74$  dans l'équation (3.10).

## 3.2.2 Oxydation par $O_2$

L'oxydation des particules par  $O_2$ , représentée par la réaction globale (3.15), est également modélisée par le mécanisme HACA :



Sa vitesse est calculée par l'équation (3.16) pour chaque version du mécanisme :

$$\begin{array}{l|l} \text{Version de Kazakov} & \text{Version de Blanquart} \\ \mathcal{K}^f = \alpha \chi_s s \mathcal{K}_4^f & \mathcal{K}^f = \chi_s s \mathcal{K}_5^f. \end{array} \quad (3.16)$$

### 3.2.3 Oxydation par OH

L'oxydation des particules par OH est représentée par la réaction globale (3.17) :



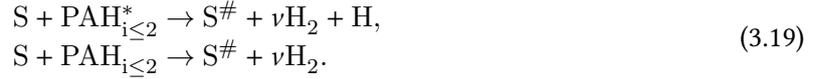
Sa vitesse est calculée d'après le modèle classique de Neoh [78] par l'équation (3.18) :

$$\begin{aligned} \mathcal{K}^f &= \mathcal{N}_a \gamma_{OH} \left[ \frac{\pi \mathcal{R} T_g}{2} \left( \frac{1}{\mathcal{M}_{OH}} + \frac{1}{\mathcal{M}} \right) \right]^{1/2} (d_{OH} + d)^2, \\ &\sim \mathcal{N}_a \gamma_{OH} \left[ \frac{\pi \mathcal{R} T_g}{2 \mathcal{M}_{OH}} \right]^{1/2} d^2, \end{aligned} \quad (3.18)$$

où l'efficacité de collision,  $\gamma_{OH}$ , entre un radical OH et une particule S est égale à 0,13. Il est d'usage, compte tenu de la masse et de la taille des particules de suie, de négliger les termes  $1/\mathcal{M}$  et  $d_{OH}$  devant les termes  $1/\mathcal{M}_{OH}$  et  $d$  respectivement.

### 3.2.4 Condensation des PAH

La condensation des PAH et de leurs radicaux doit être adaptée au modèle sectionnel de nucléation mis en œuvre dans ce travail de thèse. Elle est représentée par les réactions globales (3.19), par analogie avec les réactions (2.22) :



Leurs vitesses sont calculées par l'équation (3.20) :

$$\mathcal{K}^f = 2,2 \mathcal{N}_a \gamma_P \beta_F, \quad (3.20)$$

où l'efficacité de collision  $\gamma_P$  est prise égale à 0,3 [23] en première approximation. Le facteur 2,2 est la constante de Van der Waals [51], qui caractérise l'augmentation de la fréquence de collision  $\beta_F$  de deux molécules chargées à cause des forces d'attraction électrique de Van der Waals.  $\beta_F$ , qui sera également utile à la modélisation des interactions entre particules de suie, est déterminée par la formule de Fuchs [36] pour deux partenaires de collision  $i$  et  $j$  :

$$\beta_F = \underbrace{\left[ \frac{\pi \mathcal{R} T_g}{2} \left( \frac{1}{\mathcal{M}_i} + \frac{1}{\mathcal{M}_j} \right) \right]^{1/2} (d_i + d_j)^2}_{\text{Régime moléculaire libre}} \cdot \underbrace{\left[ 1 + \frac{(d_i + d_j)^2 \sqrt{C_i^2 + C_j^2}}{8 (D_i + D_j) (d_i + d_j + 2 \sqrt{G_i^2 + G_j^2})} \right]^{-1}}_{\text{Correction pour le régime continu}}. \quad (3.21)$$

L'équation (3.21) a l'avantage d'être valable quels que soient le libre parcours moyen  $\lambda$  de la phase gazeuse et le diamètre des particules, i.e. du régime moléculaire libre au régime continu. Les variables  $C$ ,  $D$  et  $G$  y sont définies comme suit :

$$C_i = \left[ \frac{8 \mathcal{R} T_g}{\pi \mathcal{M}_i} \right]^{1/2}, \quad D_i = \frac{k_B T_g C u_i}{3 \pi \mu_g d_i}, \quad G_i = \frac{(d_i + l_i)^3 - (d_i^2 + l_i^2)^{3/2}}{3 d_i l_i} - d_i, \quad (3.22)$$

$$\lambda = \frac{\mu_g}{p_g} \left[ \frac{\pi \mathcal{R} T_g}{2 \mathcal{M}_g} \right]^{1/2}, \quad Kn_i = \frac{2 \lambda}{d_i}, \quad C u_i = 1 + Kn_i [1,257 + 0,4 \exp(-1,1 / Kn_i)], \quad l_i = \frac{8 D_i}{\pi C_i}.$$

avec  $Kn$  le nombre de Knudsen,  $C u$  le facteur de correction de Cunningham,  $\mathcal{M}_g$  la masse molaire de la phase gazeuse et  $\mu_g$  sa viscosité.

### 3.3 Traitement de la fin de vie d'un réactant gazeux

Dans la formulation mise en œuvre, le terme source de masse d'une particule est, par défaut, intégré explicitement dans SPARTE pour déterminer son nouveau diamètre, sans considération de la masse de réactant R effectivement disponible pour sa croissance ou son oxydation. Il existe donc un risque de surestimer l'évolution des particules et de R.

Pour les simulations LES instationnaires, on veut pouvoir contrôler au mieux l'évolution des phases gazeuse et dispersée à chaque cycle. Pour cela, on choisit de mettre en place un mécanisme de limitation des sources de masse des réactants gazeux dans le code CEDRE. On notera qu'un tel mécanisme peut être appliqué séparément à chaque sous-modèle d'évolution, les réactants R étant tous distincts.

#### 3.3.1 Adaptation préliminaire de l'opérateur d'intégration temporelle eulérien

On doit en premier lieu se donner la possibilité d'intégrer, dans CHARME, les sources de masse des réactants R par une méthode explicite d'ordre 1, consistante avec celle de SPARTE, et indépendamment des autres déséquilibres. On tire ici avantage des fonctionnalités offertes par le solveur CHARME, qui permet de spécifier son propre opérateur d'intégration temporelle.

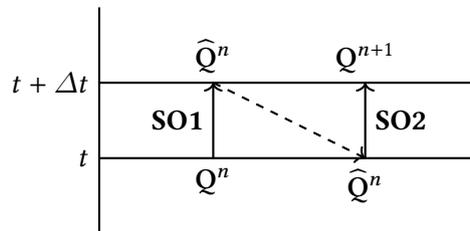


FIGURE 3.1 – Illustration du splitting d'opérateur d'ordre 1 de Lie, avec  $\Delta t$  le pas de temps et  $Q$  le vecteur d'état de la phase gazeuse [98].

On utilisera, pour les simulations instationnaires dans ce travail de thèse, le splitting d'ordre 1 de Lie [104]. Le pas de temps imposé par la cinétique chimique et la fraction volumique de la phase dispersée étant très petits, on supposera que l'erreur ainsi introduite reste bornée. Sous cette hypothèse, deux sous-opérateurs d'intégration temporelle seront mis en œuvre, comme illustré sur la figure 3.1 :

1. **SO1** avec la méthode Euler explicite, a priori stable pour le pas de temps et les niveaux de fraction volumique considérés, pour les sources de couplage de la phase dispersée vers la phase gazeuse uniquement,
2. **SO2** avec une méthode implicite ou explicite, mono- ou multi-étape, pour les flux et les sources internes de la phase gazeuse.

Par souci de cohérence de l'avance en temps, le vecteur d'état obtenu par l'opérateur **SO1**, noté  $\hat{Q}^n$ , doit remplacer le vecteur d'état  $Q^n$  initialement fourni à SPARTE. Pour cela, on ajoute un échange entre les cycles des solveurs CHARME et SPARTE, comme indiqué sur la figure 3.2.

#### 3.3.2 Limitation des sources de masse par espèce et par cellule

On considère un sous-modèle d'évolution des particules, pour lequel le terme source de masse total du réactant R dans la cellule  $c$  est déterminé comme suit :

$$\dot{\omega}_{tot,R} = \sum_{p \in \mathcal{P}_c} w_p \dot{\omega}_{p,R}. \quad (3.23)$$

avec  $\mathcal{P}_c$  l'ensemble des particules numériques, de poids  $w_p$ , contenues dans  $c$  et  $\dot{\omega}_{p,R}$  le terme source de masse de R pour chacune, donné par l'équation (3.6).

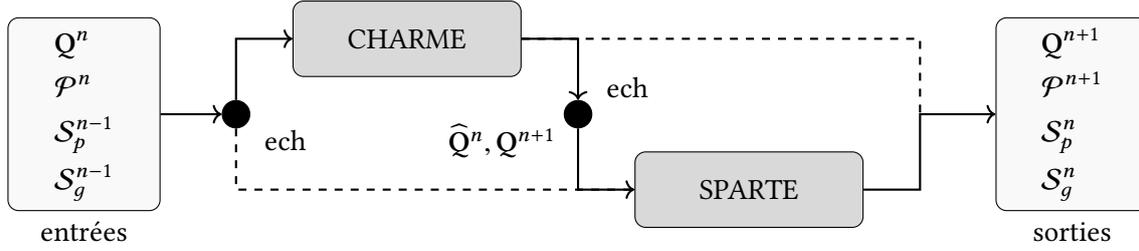


FIGURE 3.2 – Couplage CHARME-SPARTE pour la limitation des sources de couplage.

Pour prévenir la consommation excessive du réactant gazeux et assurer son intégrabilité, on définit le coefficient de limitation du terme source total dans SPARTE par l'équation (3.24) :

$$\alpha_{c,R} = \min \left[ 1, -\frac{1}{\dot{\omega}_{tot,R} \mathcal{V}_c \Delta t} \min \left( \hat{m}_{c,R}^n, m_{c,R}^{n+1} \right) \right] \sim \frac{\text{Masse disponible}}{\text{Masse consommée}}. \quad (3.24)$$

où  $\hat{m}_{c,R}^n$  et  $m_{c,R}^{n+1}$  sont les masses de R dans  $c$  en début de cycle SPARTE et en fin de cycle CHARME, obtenues par échange entre les solveurs. Si la limitation s'active,  $\dot{\omega}_{i,R}$ , les termes source de P et H<sub>2</sub> relatifs aux particules dans  $\mathcal{P}_c$ , ainsi que le terme source de ces particules, sont chacun multipliés par  $\alpha_{c,R}$  afin de garantir la conservation de la masse.

### 3.4 Traitement de la fin de vie d'une particule

Par défaut, le terme source de masse d'une particule est également intégré explicitement, dans SPARTE, sans considération de sa masse initiale. Il existe donc un risque d'aboutir à des particules de masse négative et de surestimer la consommation ou la production des espèces gazeuses, imposée par l'ensemble des sous-modèles d'évolution chimique de la phase dispersée. Pour éviter cette situation, on choisit de mettre en place un mécanisme de limitation appliqué aux sources de masse des particules, après la limitation des sources de masse des réactants R si celle-ci est activée.

On notera que, contrairement au précédent, ce mécanisme de limitation est obligatoire quelle que soit la simulation, stationnaire ou instationnaire, et la méthode d'intégration temporelle retenue dans le solveur CHARME. En effet, s'il est vrai que les masses volumiques des espèces gazeuses peuvent être bornées simultanément par renormalisation des fractions massiques dans CHARME, ce n'est pas le cas pour la masse des particules dans SPARTE. Elle doit être bornée séparément pour chacune.

#### 3.4.1 Limitation des sources de masse par particule

On considère une particule S de diamètre  $d$ , localisée dans la cellule  $c$ , dont le terme source de masse total  $\dot{\omega}_{tot,S}$  est déterminé comme suit :

$$\dot{\omega}_{tot,S} = \sum_{m \in M} \dot{\omega}_S^m. \quad (3.25)$$

avec  $M$  l'ensemble des sous-modèles d'évolution chimique et  $\dot{\omega}_S^m$  le terme source de masse de S pour chacun, donné par l'équation (3.6).

Pour garantir la positivité de la nouvelle masse de la particule, on définit le coefficient de limitation du terme source de masse total par l'équation (3.26) :

$$\alpha_S = \min \left[ 1, -\frac{\pi \rho_0 d^3}{6 \dot{\omega}_{tot,S} \mathcal{V}_c \Delta t} \right] \sim \frac{\text{Masse initiale}}{\text{Masse consommée}}. \quad (3.26)$$

Si la limitation s'active,  $\dot{\omega}_{tot,S}$  et les termes sources de R, P et H<sub>2</sub> relatifs à la particule S sont chacun multipliés par  $\alpha_S$  afin d'assurer la conservation de la masse.

### 3.4.2 Choix du critère de suppression des particules de suie

Avec le mécanisme mis en place, on est en mesure, au cours de chaque cycle, de borner la masse des particules à zéro. Toutefois, on convient aisément qu'il n'est pas nécessaire de transporter les particules de très petit diamètre, dont la contribution à la phase dispersée est mineure. C'est pour cette raison qu'elles sont supprimées dès que leur diamètre devient inférieur à un diamètre  $d_s$ . Dans ce travail de thèse,  $d_s$  est défini arbitrairement comme le diamètre d'une particule sphérique dont le volume est la moitié de celui des particules injectées :

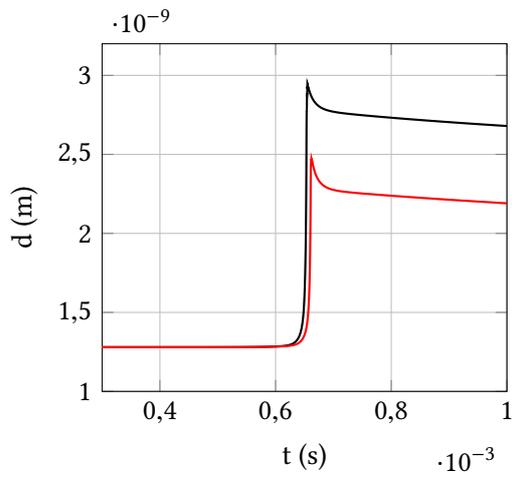
$$d_s = 2^{-1/3} d_0 = 1,02 \text{ nm.} \quad (3.27)$$

### 3.5 Cas-test 0D

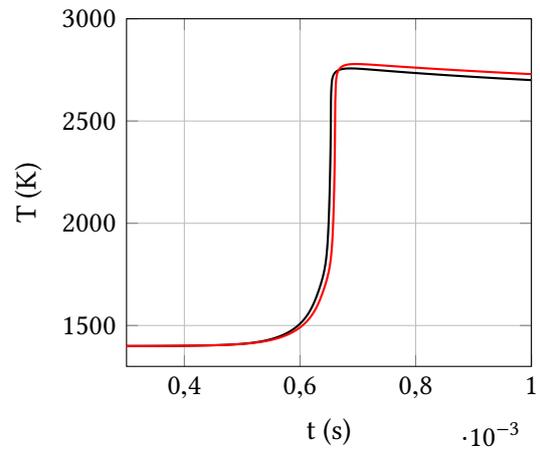
Afin de valider la stratégie de splitting et de limitation des sources de couplage par la masse des réactants gazeux pour les simulations instationnaires, on l'applique à un cas-test de réacteur  $C_2H_4$ -air à pression et enthalpie constantes.

On considère une unique cellule cubique de 1 mm de côté, comme expliqué au chapitre 2. Dans le solveur CHARME, la composition de la phase gazeuse est initialisée à la richesse 2,8, la température à 1400 K et la pression à 1 bar. Dans le solveur SPARTE, la fraction volumique de suie est initialisée à 1 ppm, avec une particule numérique de diamètre  $d_0$  à l'équilibre thermodynamique avec la phase gazeuse. Les sous-modèles d'évolution chimique sont tous activés. Les interactions entre particules, qui ne contribuent pas directement aux sources de couplage, sont neutralisées à ce stade. L'intégration du terme source de nucléation et l'injection de nouvelles particules sont également désactivées pour éviter leur accumulation, sans que cela ne nuise à la validité du cas-test. Le pas de temps est de 0,1  $\mu$ s pour les deux solveurs, et le temps physique de simulation de 1 ms.

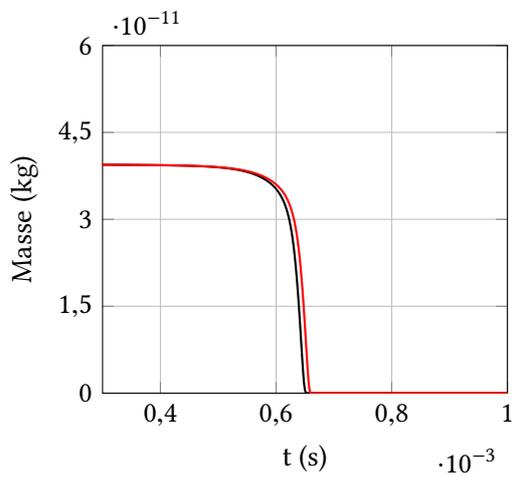
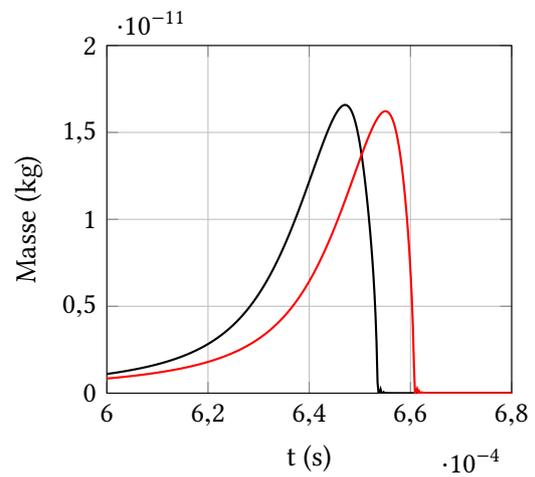
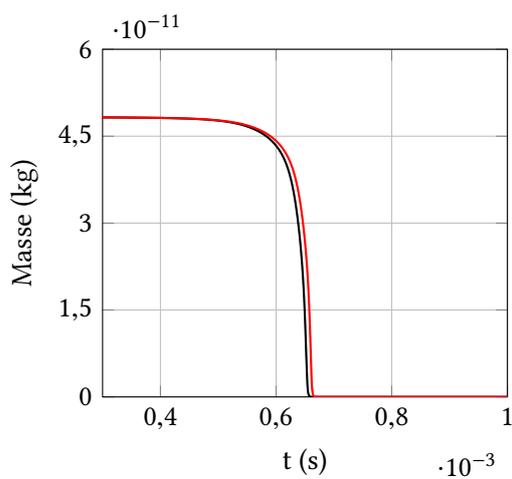
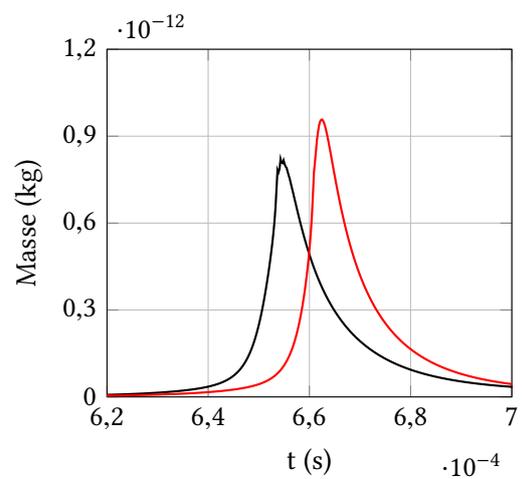
Deux simulations sont comparées : la première, qui sert de référence, avec la méthode implicite de Gear d'ordre 2 sans splitting ni limitation (SS-SL), et la deuxième avec splitting et limitation (AS-AL), ces deux méthodes étant indissociables pour assurer la cohérence de l'avance en temps. La figure 3.3 présente, pour chacune, l'évolution du diamètre des particules en fonction du temps, ainsi que de la température et de la masse des espèces  $C_2H_4$ ,  $C_2H_2$ ,  $O_2$ ,  $OH$ ,  $PAH_1$  et  $PAH_1^*$  dans le domaine de calcul. Elle montre en particulier l'importance de la limitation – principalement par rapport à la masse de réactants en début de cycle SPARTE ici – sur le calcul du diamètre  $d$  des particules. Pour le réacteur HP simulé, où les processus de croissance sont dominants, une surestimation significative de  $d$  est en effet visible sur le cas SS-SL. L'évolution de la masse des espèces gazeuses est également faussée.



(a) Diamètre des particules.



(b) Température de la phase gazeuse.

(c) C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>.(d) C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>.(e) O<sub>2</sub>.

(f) OH.

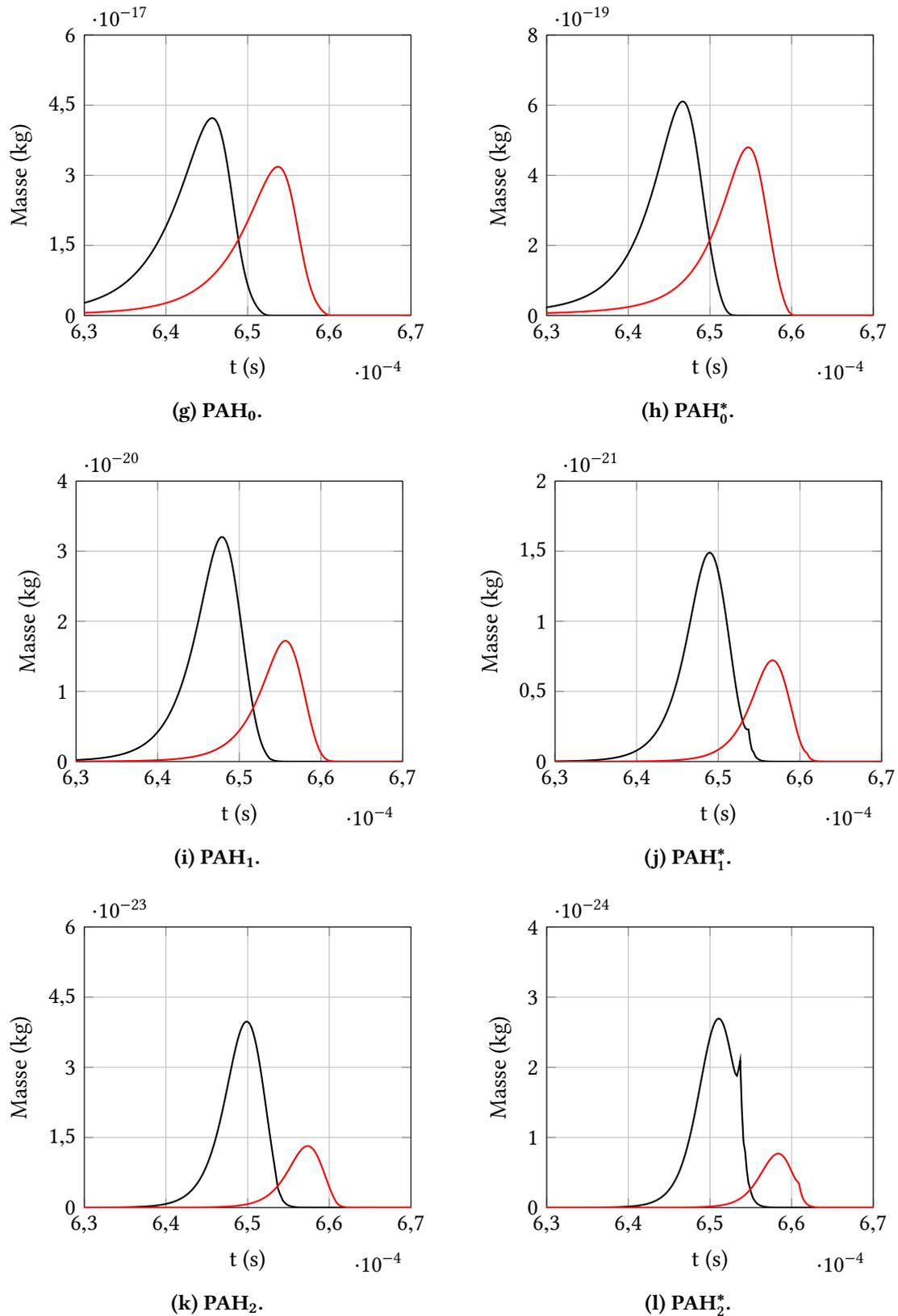


FIGURE 3.3 – Comparaison de l'évolution du diamètre des particules, de la température et de la masse des espèces d'intérêt dans le domaine de calcul en fonction du temps et de la procédure de couplage CHARME-SPARTE : SS-SL (—) et AS-AL (—).

## Bilan

Dans ce chapitre, on a décrit la mise en place d'une formulation générique pour les modèles d'évolution des particules de suie, cette formulation étant compatible avec l'ensemble des sous-modèles utilisés dans ce travail de thèse. On a ensuite explicité la description retenue pour modéliser la croissance en surface des particules, l'oxydation par  $O_2$  et OH, et la condensation des PAH. On a enfin introduit un traitement spécifique pour la fin de vie des réactants gazeux et des particules. En particulier, on a mis en évidence sur un cas-test 0D de réacteur à pression et enthalpie constantes la nécessité de la limitation des sources de couplage des phases gazeuse et dispersée pour le calcul du diamètre des particules. À ce stade, on dispose donc d'un ensemble modèle-méthode numérique permettant de représenter l'évolution des particules de suie par des processus chimiques. On doit maintenant modéliser les interactions entre particules.



---

## Chapitre 4

# Développement d'un algorithme de collision entre particules sphériques adapté aux interactions entre particules de suie

---

L'objectif de ce chapitre est de décrire la mise en place d'un algorithme de collision entre particules numériques capable de reproduire les interactions réelles entre particules de suie physiques. Pour cela, on propose tout d'abord une modélisation des collisions pour le cas particulier de particules sphériques. On dérive ensuite l'opérateur de collision qui en découle et on met en place un algorithme de collision stochastique permettant de résoudre l'équation d'évolution de la population de particules. Enfin, on introduit les avancées de ce travail de thèse vers la description d'agrégats de particules sphériques.

### Sommaire

---

4.1	Modélisation des interactions entre particules de suie . . . . .	56
4.1.1	Coalescence et agrégation de particules . . . . .	56
4.1.2	Restriction aux particules sphériques . . . . .	56
4.2	Dérivation d'un opérateur de collision . . . . .	57
4.2.1	Formulation faible de l'opérateur de collision . . . . .	57
4.2.2	Expression de la fréquence de collision entre particules . . . . .	59
4.3	Mise en place d'un algorithme de collision stochastique entre particules sphériques. . . . .	59
4.4	Vers une extension aux agrégats de particules sphériques . . . . .	60
4.5	Cas-test 0D . . . . .	61
4.5.1	Particules sphériques. . . . .	62
4.5.2	Agrégats de particules sphériques . . . . .	64

---

## 4.1 Modélisation des interactions entre particules de suie

Afin de décrire l'évolution des particules de suie, on doit être en mesure de modéliser les collisions entre elles, en plus de leurs interactions chimiques avec la phase gazeuse. Pour cela, deux régimes sont généralement considérés : la coalescence et l'agrégation.

### 4.1.1 Coalescence et agrégation de particules

Contrairement à l'hypothèse simplificatrice formulée au chapitre 2, les particules de suie les plus jeunes ne sont pas totalement solides. Leur comportement est, de fait, assimilable à celui de gouttes liquides, visqueuses et déformables. C'est pour cette raison qu'elles coalescent avec leur partenaire de collision pour former une particule sphérique dont le volume est la somme des volumes des particules incidentes. On pourra consulter la thèse de Dorey [20], qui propose une synthèse sur la physique de l'évolution des suies, pour plus de détails sur ce point.

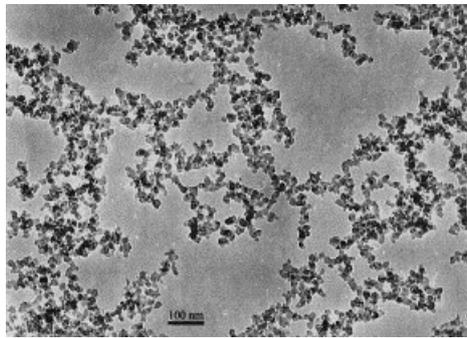


FIGURE 4.1 – Observation par TEM (*Transmission Electron Microscopy*) d'agrégats de suie dans une flamme de prémélange éthylène-air à pression atmosphérique [112].

En traversant les zones de haute température de l'écoulement dans lequel elles se trouvent, les particules jeunes se carbonisent et se solidifient néanmoins [19]. Dès lors, elles s'agrègent pour former des chaînes de sphérules de taille croissante, comme le montre par exemple la figure 4.1. Le contact entre les sphérules peut être supposé ponctuel au sein d'un agrégat, en première approximation, et le volume d'un agrégat égal à la somme des volumes des particules primaires le composant.

### 4.1.2 Restriction aux particules sphériques

On associe la transition de la coalescence à l'agrégation au dépassement d'un diamètre critique, noté  $d_c$  et fixé initialement à  $10 \cdot d_0$ . On veut ainsi restreindre le régime de coalescence aux particules jeunes, assimilées aux particules de petite taille. On cherchera par la suite à montrer l'influence de  $d_c$  sur l'évolution d'une population de particules et à en estimer la valeur pour la combustion  $C_2H_4$ /air.

On notera qu'avec l'approche mise en œuvre ici les particules âgées peuvent atteindre un diamètre inférieur à  $d_c$  suite à une oxydation intense et à nouveau coalescer, ce qui est discutable en pratique. Le traitement de ce cas particulier n'a cependant pas pu être abordé.

Dans la majeure partie de ce travail de thèse, on ne modélise pas la formation d'agrégats de particules sphériques, discutée ultérieurement, car incompatible avec le formalisme du solveur SPARTE. On ne considère donc que trois cas d'interactions entre les particules sphériques transportées :

1. **Coalescence YY** : Deux particules sphériques jeunes, de diamètre inférieur à  $d_c$ , coalescent lors de leur collision pour former une nouvelle particule sphérique.
2. **Coalescence YO** : Une particule sphérique jeune, de diamètre inférieur à  $d_c$ , et une particule sphérique âgée, de diamètre supérieur à  $d_c$ , coalescent lors de leur collision pour former une

nouvelle particule sphérique. Leur fréquence de collision, proportionnelle au facteur  $\beta_F$  de l'équation (3.21), peut être biaisée, car on ne prend pas en compte la collision physique de la particule jeune avec l'agrégat dans lequel pourrait se trouver la particule âgée.

3. **Pseudo-agrégation OO** : Deux particules sphériques âgées, de diamètre supérieur à  $d_c$ , ne coalescent pas lors de leur collision. Leur fréquence de collision peut également être biaisée, car on ne prend pas en compte la collision physique des deux agrégats dans lesquels pourraient se trouver les particules.

On remarquera que la fraction volumique  $f_v$ , majoritairement utilisée pour la confrontation des simulations numériques aux mesures expérimentales, n'est pas directement affectée par les biais de modélisation cités ci-dessus. En outre, la description adoptée est compatible en première approximation avec les modèles simples de rayonnement, pour lesquels seule  $f_v$  est requise [21].

Pour aller plus loin, le cas **Pseudo-agrégation OO** ne modifie ni le diamètre ni la forme des particules. L'évaluation biaisée de la fréquence de collision n'est donc en rien problématique. Elle l'est en revanche pour le cas **Coalescence YO**, dans la mesure où la fréquence de collision entre un agrégat et une particule sphérique diffère a priori de celle de deux particules sphériques. De même, la fréquence de collision d'un agrégat avec une molécule de la phase gazeuse et celle d'une particule sphérique avec cette molécule n'ont aucune raison d'être égales. La vitesse des réactions d'oxydation par OH et de condensation des PAH calculée pour une particule sphérique devrait donc en toute rigueur être déterminée par le diamètre de collision et la masse molaire de l'agrégat la contenant. Pour ces cas, on atteint les limites actuelles de la description de la phase dispersée par des particules simples dans SPARTE.

## 4.2 Dérivation d'un opérateur de collision

Pour dériver l'opérateur de collision  $Q_{coll}$  introduit au chapitre 1, on s'appuie largement sur les travaux de Hylkema [54] et Fede [27], que le lecteur pourra consulter pour plus de détails.

### 4.2.1 Formulation faible de l'opérateur de collision

On rappelle en premier lieu que les particules de suie localisées dans une même cellule ont, à l'exception de celles éventuellement reçues des cellules voisines à l'étape de transport, la même vitesse macroscopique  $V$ . Il est donc exclu de calculer leur fréquence de collision en fonction de leur vitesse relative, comme il est d'usage de le faire pour les collisions balistiques entre gouttes [76]. Le diamètre des particules de suie ne dépassant généralement pas  $1 \mu\text{m}$ , on considère ici, selon la théorie des aérosols [64], que les collisions entre elles sont la conséquence du mouvement Brownien à l'échelle microscopique. Sous cette hypothèse, la fréquence de collision ne dépend que du diamètre des particules et des propriétés thermodynamiques de la phase gazeuse.

À chaque instant  $t$ , l'opérateur de collision peut être écrit pour une particule de rayon  $r$  comme la somme d'un terme de consommation  $Q^-$  et de termes de production, dus à la coalescence  $Q_{coa}^+$  et à la pseudo-agrégation  $Q_{ag}^+$  dans ce travail de thèse :

$$Q_{coll}(t, r) = -Q^-(t, r) + Q_{coa}^+(t, r) + Q_{ag}^+(t, r). \quad (4.1)$$

Dans l'équation (4.1) et dans la suite, la dépendance des grandeurs particulières aux variables  $x$  et  $V$ , ainsi que les intégrales par rapport à ces mêmes variables ne sont pas écrites pour alléger les notations, sans que cela ne nuise à la compréhension de la démarche.

Le terme  $Q^-$  est déterminé sous l'hypothèse de mouvement Brownien par l'équation (4.2) :

$$Q^-(t, r) = \int_{\mathbb{R}^+} f(t, r) f(t, r^*) \beta(t, r, r^*) dr^*, \quad (4.2)$$

où  $f(t, r)$  est la fonction densité de probabilité du nombre de particules décrite au chapitre 1 et  $\beta(t, r, r^*)$  la fréquence de collision de deux particules de rayon  $r$  et  $r^*$ .  $Q^-(t, r) dt dr$  représente le nombre moyen de particules supprimées dans l'intervalle  $[r, r + dr]$  suite à une collision entre les instants  $t$  et  $t + dt$ .

Le terme  $Q_{coa}^+$  est déterminé par l'équation (4.3) :

$$Q_{coa}^+(t, r) = \frac{1}{2} \int_{\mathbb{R}^+} E_{coa}(r^\circ, r^*) f(t, r^\circ) f(t, r^*) \beta(t, r^\circ, r^*) \left(\frac{r}{r^\circ}\right)^2 dr^*, \quad (4.3)$$

avec  $r^\circ = (r^3 - r^{*3})^{1/3}$  le rayon de la particule coalescant avec celle de rayon  $r^*$  pour en former une de rayon  $r$  et  $E_{coa}(r^\circ, r^*)$  l'efficacité de coalescence de deux particules de rayon  $r^\circ$  et  $r^*$ .  $Q_{coa}^+(t, r) dt dr$  représente le nombre moyen de particules créées dans l'intervalle  $[r, r + dr]$  par coalescence entre les instants  $t$  et  $t + dt$ . Dans son expression, le facteur  $1/2$  s'explique par la formation d'une unique particule pour deux consommées, et le rapport  $(r/r^\circ)^2$  par le changement de variable  $r \rightarrow r^\circ$  dans  $Q_{coa}^+(t, r) dt dr$ .

Le terme  $Q_{ag}^+$  est déterminé par l'équation (4.4) :

$$Q_{ag}^+(t, r) = \int_{\mathbb{R}^+} E_{ag}(r^\diamond, r^*) f(t, r^\diamond) f(t, r^*) \beta(t, r^\diamond, r^*) dr^*, \quad (4.4)$$

avec  $r^\diamond$  le rayon de la particule entrant en collision avec celle de rayon  $r^*$  pour en former une de rayon  $r$  et  $E_{ag}(r^\diamond, r^*)$  l'efficacité de pseudo-agrégation de deux particules de rayon  $r^\diamond$  et  $r^*$ .  $Q_{ag}^+(t, r) dt dr$  représente le nombre moyen de particules créées dans l'intervalle  $[r, r + dr]$  par pseudo-agrégation entre les instants  $t$  et  $t + dt$ . Dans l'équation (4.4),  $r^\diamond$  est égal à  $r$  car la pseudo-agrégation ne modifie pas le rayon des partenaires de collision, comme décrit précédemment. Le nombre de sphérules est également inchangé, d'où l'absence dans l'expression de  $Q_{ag}^+(t, r) dt dr$  du facteur  $1/2$  introduit pour la coalescence. Par définition,  $E_{coa}(r, r^*) + E_{ag}(r, r^*) = 1$  avec les deux seuls mécanismes d'interaction considérés et :

$$E_{coa}(r, r^*) = \begin{cases} 1 & \text{si } 2r \text{ ou } 2r^* \text{ inférieur à } d_c, \\ 0 & \text{sinon,} \end{cases} \quad (4.5)$$

pour la modélisation retenue.

Comme dans [53], pour toute fonction test  $\varphi$  de  $\mathbb{R}^+$ , la formulation faible de l'opérateur de collision est donnée par l'équation (4.6), à condition que les intégrales soient définies :

$$\begin{aligned} \int_{\mathbb{R}^+} Q_{coll}(t, r) \varphi(r) dr &= - \iint_{\mathbb{R}^{+2}} f(t, r) f(t, r^*) \beta(t, r, r^*) \varphi(r) dr dr^* \\ &+ \iint_{\mathbb{R}^{+2}} \frac{1}{2} E_{coa}(t, r^\circ, r^*) f(t, r^\circ) f(t, r^*) \beta(t, r^\circ, r^*) \varphi(r) dr^\circ dr^* \\ &+ \iint_{\mathbb{R}^{+2}} E_{ag}(r^\diamond, r^*) f(t, r^\diamond) f(t, r^*) \beta(t, r^\diamond, r^*) \varphi(r) dr^\diamond dr^* \\ &= \iint_{\mathbb{R}^{+2}} \left( \frac{1}{2} E_{coa}(t, r, r^*) \varphi(r^\circ) + E_{ag}(t, r, r^*) \varphi(r) - \varphi(r) \right) \\ &\quad f(t, r) f(t, r^*) \beta(t, r, r^*) dr dr^* \quad [\text{par renommage des variables}] \\ &= \iint_{\mathbb{R}^{+2}} \frac{1}{2} [E_{coa}(t, r, r^*) \varphi(r^\circ) + E_{ag}(t, r, r^*) (\varphi(r) + \varphi(r^*)) - \varphi(r) - \varphi(r^*)] \\ &\quad f(t, r) f(t, r^*) \beta(t, r, r^*) dr dr^* \quad [\text{par symétrie}] \\ &= \iint_{\mathbb{R}^{+2}} \frac{1}{2} [E_{coa}(t, r, r^*) (\varphi(r^\circ) - \varphi(r) - \varphi(r^*))] f(t, r) f(t, r^*) \beta(t, r, r^*) dr dr^*. \end{aligned} \quad (4.6)$$

Cette formulation, même si elle ne représente pas les mêmes processus physiques, est analogue à celle obtenue dans [53]. C'est ainsi que l'algorithme de collision stochastique développé par Hylkema pour approcher la solution de l'équation de Williams-Boltzmann dans le cas de gouttes peut être adapté sans difficulté aux particules de suie.

### 4.2.2 Expression de la fréquence de collision entre particules

Pour le mouvement Brownien, la fréquence de collision entre deux particules sphériques est déterminée par la formule de Fuchs (3.21), valable quels que soient leur diamètre et le libre parcours moyen de la phase gazeuse. Elle est multipliée, comme pour la condensation des PAH, par la constante de Van der Waals, égale à 2,2.

## 4.3 Mise en place d'un algorithme de collision stochastique entre particules sphériques

L'algorithme de collision stochastique mis en place dans ce travail de thèse pour représenter les interactions entre particules de suie est adapté de [53]. À chaque cycle de durée  $\Delta t$  et dans chaque cellule  $c$  contenant  $N$  particules numériques, il se divise en quatre étapes :

1. On construit aléatoirement  $N/2$  paires de particules numériques si  $N$  est pair, et  $(N - 1)/2$  sinon. Par convention, on désigne par 1 la particule dont le poids est le plus élevé dans chaque paire  $\mathcal{P}$  et par 2 la seconde particule.
2. On calcule  $\nu_{\mathcal{P}}$  pour chaque paire  $\mathcal{P}$  :

$$\nu_{\mathcal{P}} = (N - 1) \frac{w_1}{\mathcal{V}_c} \beta_{12} \Delta t, \quad (4.7)$$

où  $\mathcal{V}_c$  est le volume de la cellule,  $\beta_{12} = 2.2\beta_F$  la fréquence de collision d'une particule physique de la particule 1 avec une particule physique de la particule 2 et  $N - 1$  un facteur de compensation due à la sélection de seulement  $N/2$  paires parmi les  $N(N - 1)/2$  possibles. Pour une paire  $\mathcal{P}$ ,  $\nu_{\mathcal{P}}$  représente le nombre moyen de collisions d'une particule physique de la particule 1 avec une particule physique de la particule 2 entre les instants  $t$  et  $t + (N - 1)\Delta t$ ,  $\mathcal{P}$  étant statistiquement sélectionnée tous les  $N - 1$  pas de temps [76]. Pour l'ensemble des  $N$  particules numériques,  $\{\nu_{\mathcal{P}}, \mathcal{P} = 1..N/2\}$  détermine la proportion de paires parmi les  $N/2$  construites, pour lesquelles les particules doivent entrer en collision dans l'intervalle  $[t, t + \Delta t]$  afin de reproduire les interactions entre toutes les particules physiques.

3. On tire aléatoirement, pour chaque paire  $\mathcal{P}$ , un nombre réel  $\alpha_{\mathcal{P}}$  dans l'intervalle  $[0, 1]$  si  $N$  est pair, et dans  $[0, (N - 1)/N]$  sinon.
4. On met à jour le vecteur d'état des particules numériques pour chaque paire  $\mathcal{P}$  telle que  $\alpha_{\mathcal{P}} \leq \nu_{\mathcal{P}}$ .

Par construction, cet algorithme ne peut décrire qu'une collision par pas de temps et par paire  $\mathcal{P}$  au maximum.  $\nu_{\mathcal{P}}$  doit ainsi être inférieur ou égal à 1 quelle que soit  $\mathcal{P}$  – sous peine de sous-résoudre les interactions entre particules – ce qui limite le choix de  $\Delta t$ . Le pas de temps réduit imposé par la cinétique chimique le garantit généralement dans ce travail. Dans le cas contraire, l'évolution de la phase dispersée ne serait pas invalidée pour autant, si cela reste localisé et sporadique.

La mise à jour des particules numériques dépend du régime de collision. Pour la coalescence, illustrée sur la figure 4.2a, le vecteur d'état  $\circ$  de la particule formée est déterminé par conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie :

$$\begin{cases} r^{\circ 3} = r_1^3 + r_2^3, \\ r^{\circ 3} \mathbf{x}^{\circ} = r_1^3 \mathbf{x}_1 + r_2^3 \mathbf{x}_2, \\ r^{\circ 3} \mathbf{V}^{\circ} = r_1^3 \mathbf{V}_1 + r_2^3 \mathbf{V}_2, \\ r^{\circ 3} T^{\circ} = r_1^3 T_1 + r_2^3 T_2. \end{cases} \quad (4.8)$$

Pour rappel, les vitesses et les températures des particules peuvent être différentes en raison des échanges entre cellules voisines à l'étape de transport. On doit donc les actualiser avant de calculer les sources de couplage des phases dispersée et gazeuse. Pour cela, on fait en particulier l'hypothèse que  $T_1$  et  $T_2$



(a) **Coalescence.** Si les deux particules numériques ont le même poids, leurs vecteurs d'états sont remplacés par ◊ et leurs poids divisés par 2. Sinon, seul le vecteur d'état de la particule 2 est remplacé par ◊ et son poids soustrait à celui de la particule 1.

(b) **Pseudo-agrégation.** Si les deux particules numériques ont le même poids, leurs vecteurs d'états sont remplacés par ◊. Sinon, la particule 1 est préablement dupliquée et le poids de la particule 2 soustrait à celui de la nouvelle particule.

**FIGURE 4.2 – Illustration des procédures de coalescence et de pseudo-agrégation de particules numériques.**

sont suffisamment proches pour déduire  $T^\circ$  sans considération de la capacité calorifique des particules, alors supposée constante sur  $[T_1, T_2]$ .

Pour la pseudo-agrégation, illustrée sur la figure 4.2b, le nouveau vecteur d'état ◊ des particules incidentes est déterminé par l'équation (4.9) :

$$\begin{cases} w = w_2, \\ \mathbf{x}^\diamond = \mathbf{x}_2, \\ \mathbf{V}^\diamond = \mathbf{V}_2, \end{cases} \quad (4.9)$$

pour imiter leur agrégation.  $\mathbf{V}_1$  et  $\mathbf{V}_2$  sont ici supposées suffisamment proches pour négliger la variation de quantité de mouvement de la particule 1.

#### 4.4 Vers une extension aux agrégats de particules sphériques

Afin de modéliser la formation d'agrégats de particules sphériques, on s'est donné la possibilité de les reconstruire à la volée à partir des particules numériques décrites dans le solveur SPARTE et de stocker leur composition. Le diamètre de collision et la masse molaire d'un agrégat de  $N_p$  sphérules sont ainsi déterminés par l'équation (4.10) :

$$\begin{cases} d = N_p^{1/d_f} \cdot \left( \sum_{i=1}^{N_p} d_i^3 \right) \cdot \left( \sum_{i=1}^{N_p} d_i^2 \right)^{-1}, \\ \mathcal{M} = \sum_{i=1}^{N_p} \mathcal{M}_i, \end{cases} \quad (4.10)$$

où  $d_f$  est sa dimension fractale, égale à 1,8 [75]. Son poids est celui des  $N_p$  particules numériques, de même poids, auxquelles appartiennent ses  $N_p$  sphérules. On notera que ces définitions sont aussi valables pour les particules sphériques non agrégées ( $N_p = 1$ ), considérées comme des agrégats particuliers dans la suite.

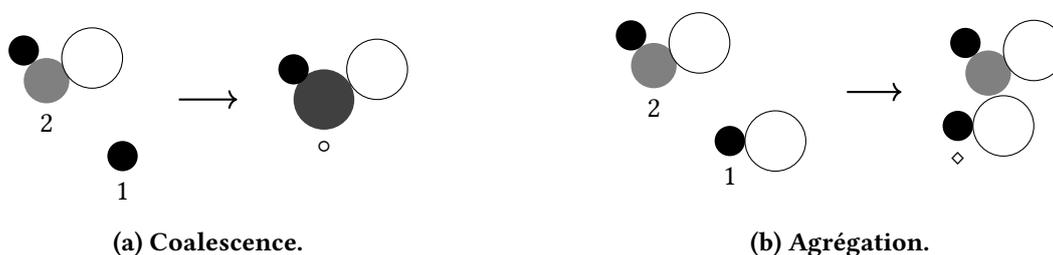
Le diamètre de collision et la masse molaire de l'agrégat la contenant sont substitués à ceux de la particule dans le calcul des vitesses de réaction d'oxydation par OH et de condensation des PAH, ce qui permet de lever une première limitation de la modélisation initiale. Dans ce cas, la concentration molaire apparente de la particule est également remplacée par celle de l'agrégat dans l'équation (3.5). Les vitesses de réaction sont donc pondérées a priori par la fraction massique de la sphérule dans l'agrégat. L'algorithme de collision stochastique est par ailleurs appliqué aux agrégats reconstruits. À chaque cycle de durée  $\Delta t$  et dans chaque cellule  $c$  contenant  $N$  agrégats, il se divise en quatre étapes :

1. On construit aléatoirement  $N/2$  paires d'agrégats si  $N$  est pair, et  $(N - 1)/2$  sinon.
2. On calcule  $\nu_{\mathcal{P}}$  pour chaque paire  $\mathcal{P}$  :

$$\nu_{\mathcal{P}} = (N - 1) \frac{w_1}{V_c} \beta_{12} \Delta t, \quad (4.11)$$

où  $\beta_{12} = 2.2\beta_F$  est la fréquence de collision d'un agrégat physique de l'agrégat 1 avec un agrégat physique de l'agrégat 2, ce qui permet de lever une deuxième limitation de la modélisation initiale.

3. On tire aléatoirement, pour chaque paire  $\mathcal{P}$ , un nombre réel  $\alpha_{\mathcal{P}}$  dans l'intervalle  $[0, 1]$  si  $N$  est pair, et dans  $[0, (N - 1)/N]$  sinon.
4. On met à jour le vecteur d'état des particules numériques contenues dans les agrégats pour chaque paire  $\mathcal{P}$  telle que  $\alpha_{\mathcal{P}} \leq \nu_{\mathcal{P}}$ .



**FIGURE 4.3 – Illustration des procédures de coalescence et d'agrégation des agrégats numériques.** Si les deux agrégats incidents ont des poids différents, l'agrégat 1 et les particules le composant sont préalablement dupliquées, et le poids de l'agrégat 2 soustrait au poids des nouvelles particules.

La mise à jour des particules numériques dépend du régime de collision. Pour la coalescence de deux particules jeunes, ou d'une jeune et d'une âgée, le vecteur d'état de la particule formée est déterminé par l'équation (4.8), comme précédemment. Par extension, pour la coalescence d'une particule jeune et d'un agrégat de  $N_p$  sphérules, schématisée sur la figure 4.3a, le partenaire de collision de la particule jeune est choisi aléatoirement parmi les sphérules de l'agrégat. Puis, son rayon et sa température sont remplacés par ceux de la particule formée, également donnés par l'équation (4.8). Pour l'agrégation de deux particules âgées, d'une particule âgée et d'un agrégat de  $N_p$  sphérules, ou de deux agrégats, illustrée sur la figure 4.3b, le vecteur d'état de toutes les particules est modifié suivant l'équation (4.9), et la composition des agrégats actualisée.

On notera que, suite à une oxydation intense, les particules d'un agrégat peuvent être supprimées. L'agrégat peut même se réduire à une unique particule de diamètre inférieur à  $d_c$  et à nouveau coalescer, comme déjà mentionné.

Dans ce travail de thèse, on fait l'hypothèse que la vitesse et la température d'un agrégat et des sphérules qu'il contient sont ceux de la phase gazeuse, quelle que soit sa taille. Ce développement ayant été réalisé en fin de thèse, la description des agrégats ne sera toutefois appliquée que dans ce chapitre à des cas-test 0D, où le suivi de ces deux variables n'est pas pertinent.

## 4.5 Cas-test 0D

On considère une unique cellule cubique de volume égal à  $2,4 \text{ cm}^3$ , représentative du volume des cellules dans les gaz brûlés adopté aux chapitres 5 et 6 pour la simulation 1D de flammes laminares de prémélange. La phase gazeuse, constituée d'un mélange  $\text{C}_2\text{H}_4/\text{air}$  au repos, est initialisée à la richesse

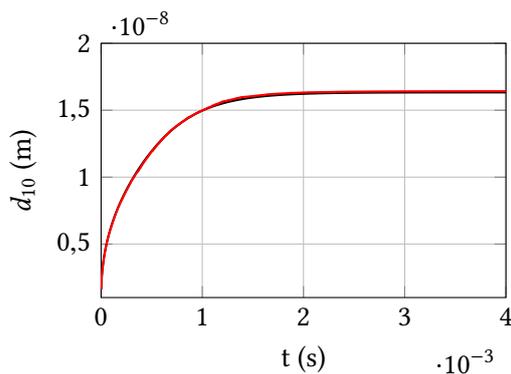
2,8, à une température de 300 K et une pression de 1 bar, puis figée à son état d'équilibre thermodynamique à enthalpie et pression constantes. La fraction volumique de suie est initialisée à la valeur de 0,6 ppm, typique des gaz brûlés dans les flammes laminares à simuler.

	Distribution mono-modale			Distribution bi-modale		
	M1	M2	M3	B1	B2	B3
$N$	2048	$1 \times 10^6$	$1 \times 10^7$	1024	$5 \times 10^5$	$5 \times 10^6$

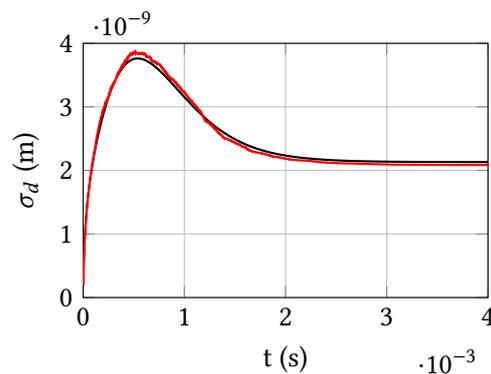
TABLE 4.1 – Nombre de particules numériques initialement créées pour chaque cas-test.

Afin d'évaluer l'algorithme de collision stochastique, seule l'étape de collision du solveur SPARTE est activée. Son pas de temps est fixé à  $1 \mu\text{s}$  et le temps physique de simulation à 4 ms. Six cas-tests, présentés dans le tableau 4.1, sont mis en œuvre. Pour les trois premiers, regroupés sous **Distribution mono-modale**,  $N$  particules numériques de diamètre  $d_0$  sont initialement créés, et pour les trois derniers, regroupés sous **Distribution bi-modale**,  $N$  particules numériques de diamètre  $d_0$  et  $N$  de diamètre  $d_c$  sont initialement créées.

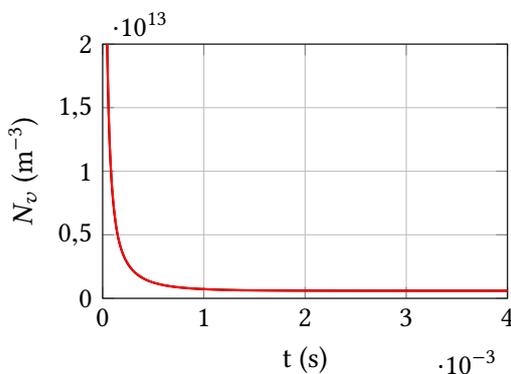
#### 4.5.1 Particules sphériques



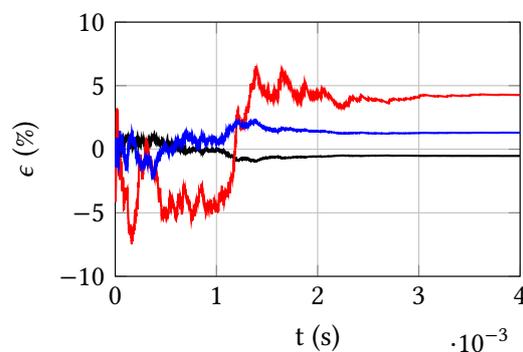
(a) Diamètre moyen des particules.



(b) Écart-type sur le diamètre des particules.



(c) Nombre de particules par unité de volume.

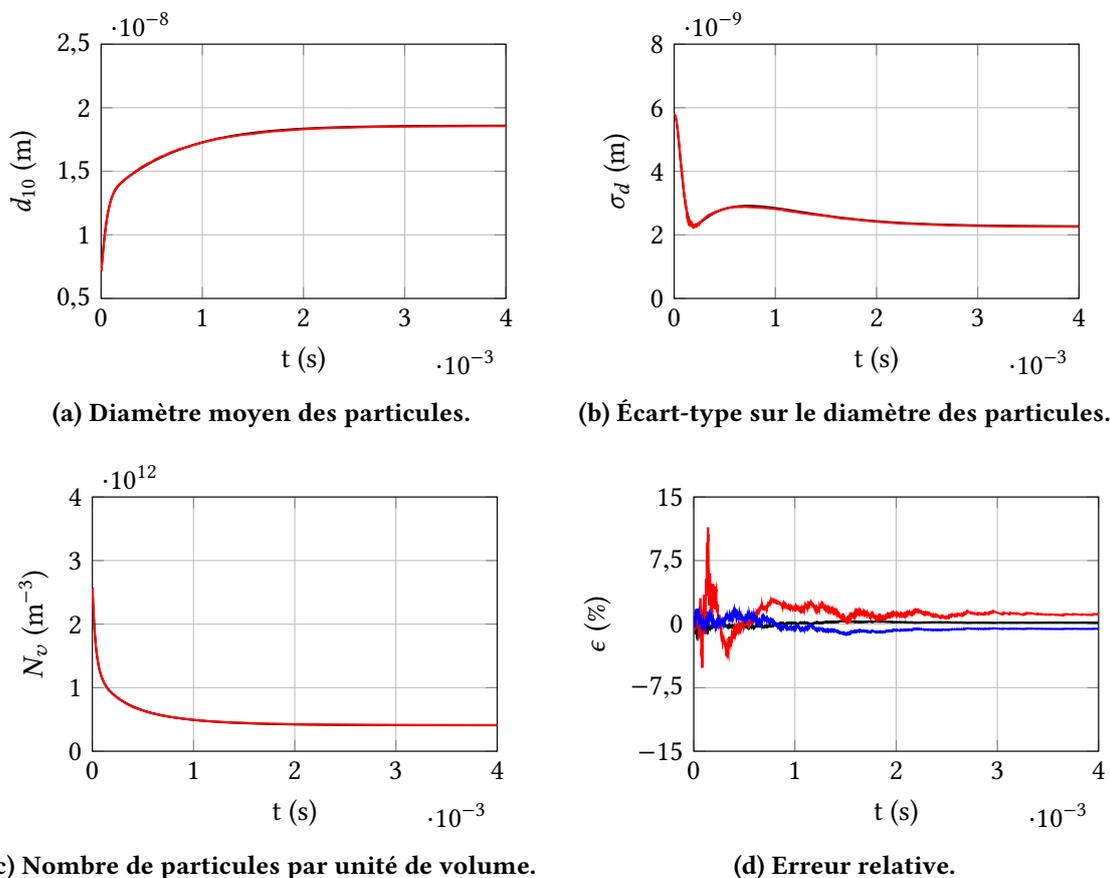


(d) Erreur relative.

FIGURE 4.4 – Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour les cas M1 (—) et M2 (—). Erreur relative pour  $d_{10}$  (—),  $\sigma_d$  (—) et  $N_v$  (—).

Comme dans la majorité de ce travail de thèse, on ne prend pas en compte la formation d'agrégats de particules sphériques ici. Sous cette hypothèse, on choisit trois variables d'intérêt pour la comparaison des cas-tests définis pour chaque distribution : le diamètre moyen des particules  $d_{10}$ , l'écart-type du diamètre  $\sigma_d$  et le nombre de particules par unité de volume  $N_v$ . On notera que les deux distributions initiales définies précédemment ont l'avantage de mettre en évidence des comportements distincts. Dans le cas bi-modal, la transition de la coalescence à la pseudo-agrégation a ainsi lieu en moins de 1 ms pour toutes les particules, alors que les deux types d'interaction coexistent tout au long du calcul dans le cas mono-modal. Un cas, dans lequel les particules n'interagiraient que par pseudo-agrégation, serait par ailleurs sans intérêt, les variables  $d_{10}$ ,  $\sigma_d$  et  $N_v$  y étant constantes par définition.

À chaque pas de temps, l'écart des grandeurs d'intérêt n'excède pas 0,22 % en valeur absolue entre les cas M2 et M3 sur la période de 4 ms simulée, et 0,26 % entre les cas B2 et B3. On considère donc, dans la suite, les cas M2 et B2 comme des références pour les distributions mono- et bi-modale respectivement.



**FIGURE 4.5 – Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour les cas B1 (—) et B2 (—). Erreur relative pour  $d_{10}$  (—),  $\sigma_d$  (—) et  $N_v$  (—).**

L'évolution de  $d_{10}$ ,  $\sigma_d$  et  $N_v$  en fonction du temps est représentée sur la figure 4.4 pour les cas M1 et M2, et sur la figure 4.5 pour les cas B1 et B2. L'erreur relative sur les trois variables y est également tracée pour plus de clarté. Elle est inférieure à 11 % en valeur absolue pour les deux distributions, ce qui montre le bon comportement de l'algorithme de collision, capable de reproduire les interactions entre particules même si l'information est initialement concentrée sur un nombre très restreint d'entités numériques. En particulier, l'erreur relative sur le diamètre moyen des particules, i.e. sur le moment d'ordre 1 de leur distribution en taille, est toujours inférieure à 2 % en valeur absolue, et est supérieure comme attendu pour l'écart-type, son moment d'ordre 2.

Dans l'optique d'appliquer l'algorithme de collision à des configurations complexes, la valeur de l'erreur relative doit également être comparée aux augmentations de coût CPU et d'occupation mémoire induites par le nombre croissant de particules numériques. Elles atteignent par exemple un facteur 750 et 42 respectivement de M1 à M2, ce qui justifie la réduction du nombre initial de particules au détriment de l'erreur sur les moments d'ordre élevé de leur distribution en taille.

#### 4.5.2 Agrégats de particules sphériques

On prend maintenant en compte la formation des agrégats, et on choisit les trois mêmes variables d'intérêt que précédemment, calculées sur l'ensemble des particules sphériques qu'ils contiennent.

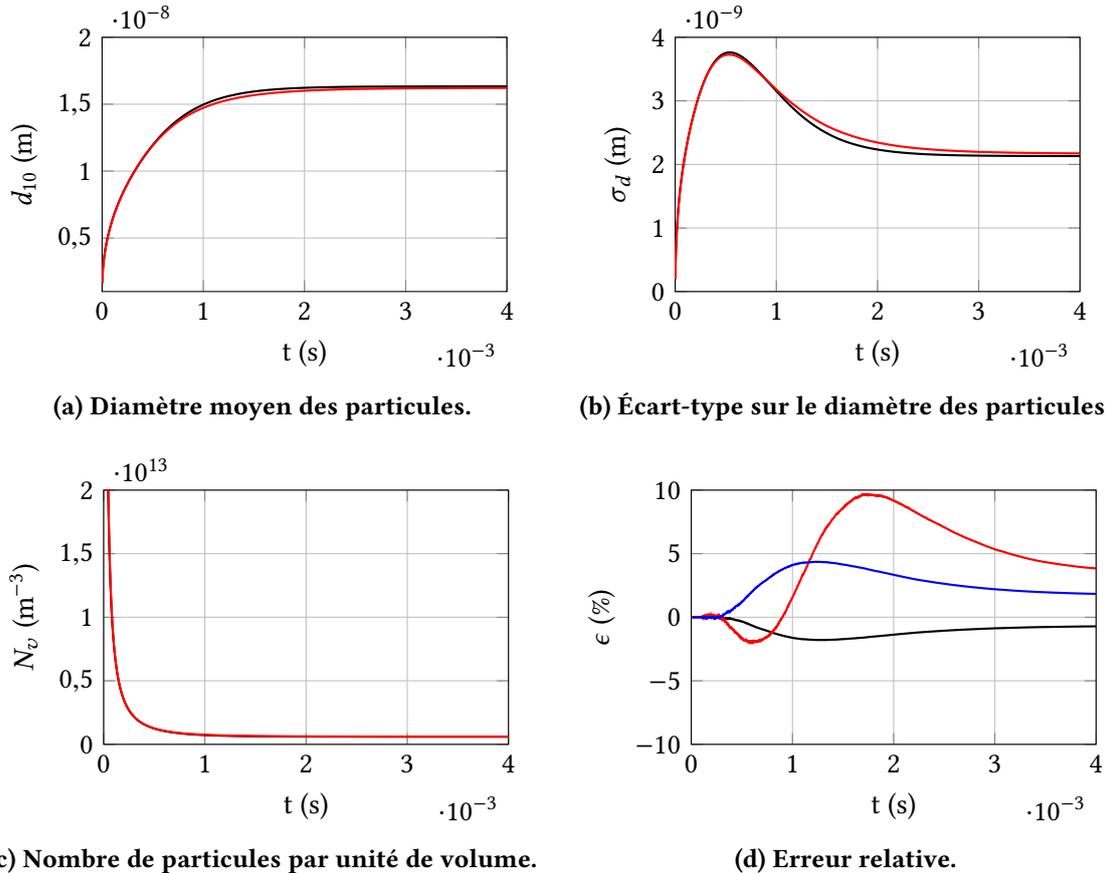
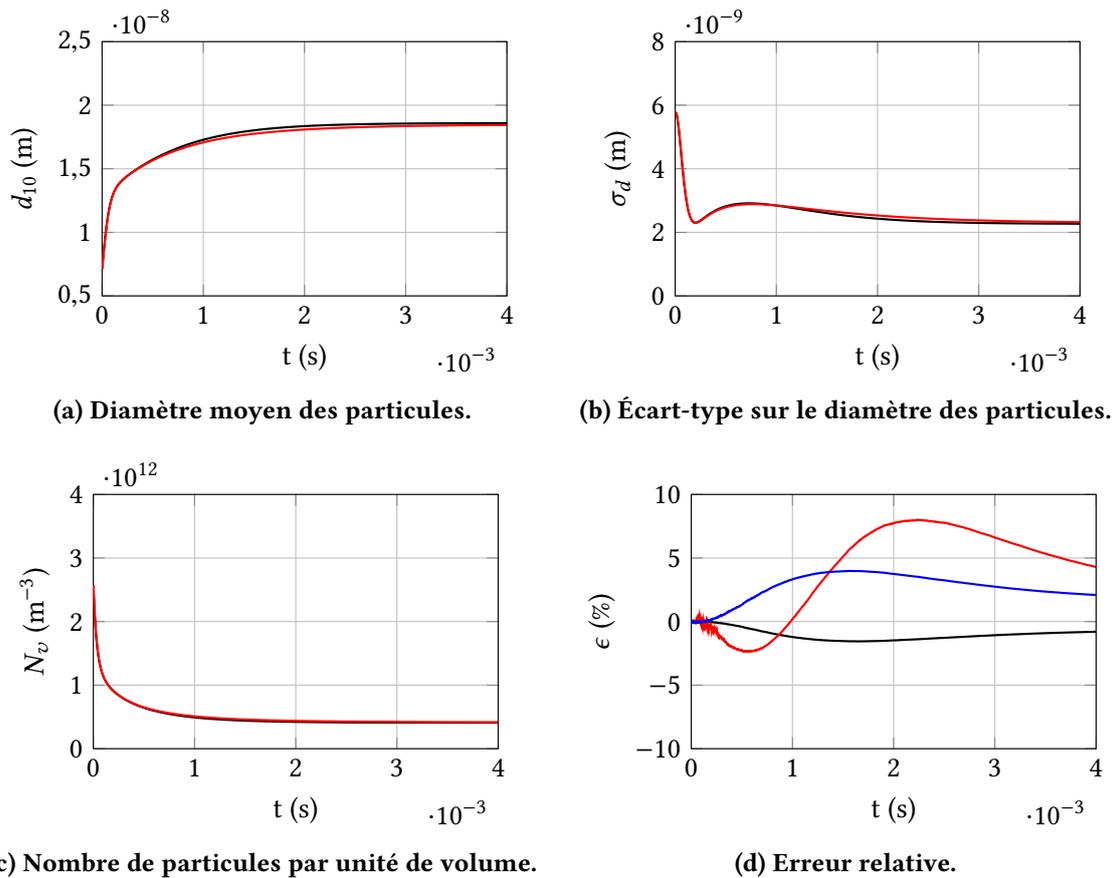


FIGURE 4.6 – Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour le cas M2 sans agrégats (—) et avec (—). Écart relatif pour  $d_{10}$  (—),  $\sigma_d$  (—) et  $N_v$  (—).

L'évolution de  $d_{10}$ ,  $\sigma_d$  et  $N_v$  en fonction du temps est représentée sur la figure 4.6 pour le cas M2, et sur la figure 4.7 pour le cas B2, sans et avec agrégats. On rappelle que ces variables sont calculées en fonction des propriétés des sphérules, même si l'agrégation est prise en compte, ce qui autorise leur comparaison quel que soit le modèle de collision choisi. L'écart relatif sur les trois variables, également tracé, est toujours inférieur à 10 % en valeur absolue pour les deux distributions, ce qui montre que l'agrégation seule n'a qu'une influence limitée sur les particules sphériques avec la modélisation retenue. Elle peut néanmoins peser sur leurs interactions chimiques avec la phase gazeuse. Pour le vérifier, on convertit la cellule cubique considérée jusqu'à présent en réacteur HP, comme au chapitre 3.

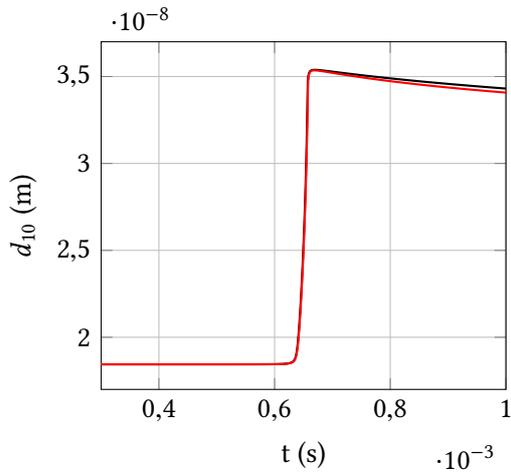
Dans le solveur CHARME, la composition de la phase gazeuse est initialisée à la richesse 2,8, la pression à 1 bar et la température à 1400 K. La méthode implicite de Gear d'ordre 2 avec splitting et limitation des sources de masse est utilisée pour l'intégration temporelle. Dans le solveur SPARTE, le



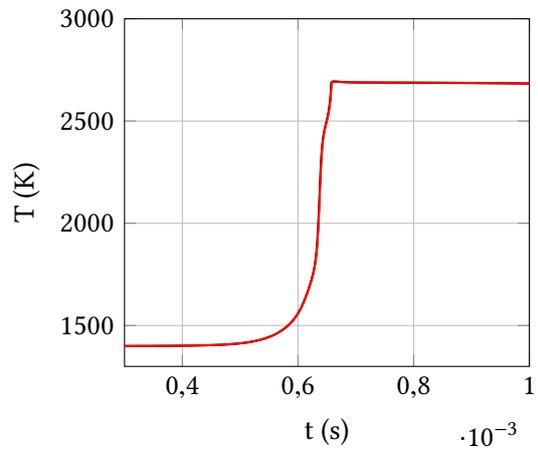
**FIGURE 4.7 – Évolution du diamètre moyen des particules, de son écart-type et du nombre de particules par unité de volume en fonction du temps pour le cas B2 sans agrégats (—) et avec (—). Écart relatif pour  $d_{10}$  (—),  $\sigma_d$  (—) et  $N_v$  (—).**

champ de particules initial est identique au champ final du cas B2 avec agrégation, et les algorithmes de collision et d'injection sont désactivés. Le pas de temps est de  $0,1 \mu\text{s}$  pour les deux solveurs, et le temps physique de simulation de 1 ms.

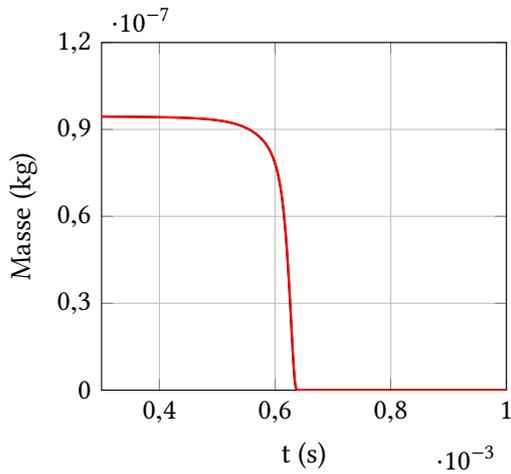
Deux simulations sont comparées : la première sans agrégat, qui sert de référence, et la deuxième avec reconstruction des agrégats du cas B2. La figure 4.8 présente, pour chacune, l'évolution du diamètre moyen des particules sphériques en fonction du temps, ainsi que de la température et de la masse des espèces  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{OH}$ ,  $\text{PAH}_1$  et  $\text{PAH}_1^*$  dans le domaine de calcul. Pour le cas-test choisi, elle montre que l'agrégation a aussi une influence limitée sur les interactions des sphérules avec la phase gazeuse.



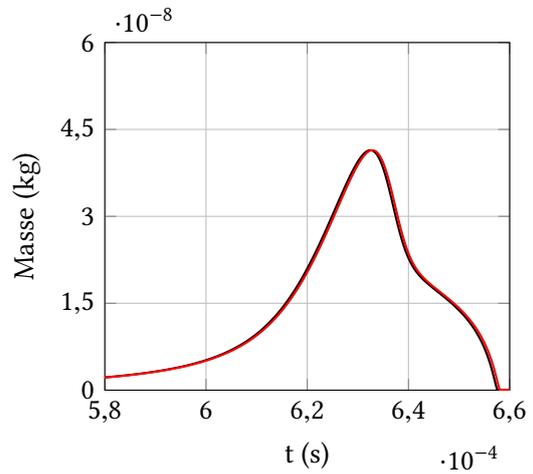
(a) Diamètre moyen des particules.



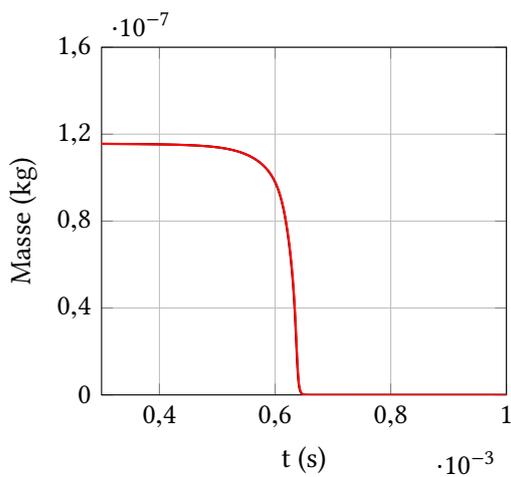
(b) Température de la phase gazeuse.



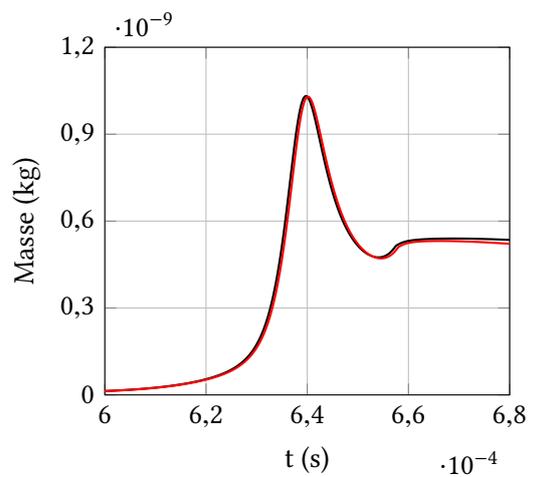
(c)  $C_2H_4$ .



(d)  $C_2H_2$ .



(e)  $O_2$ .



(f) OH.

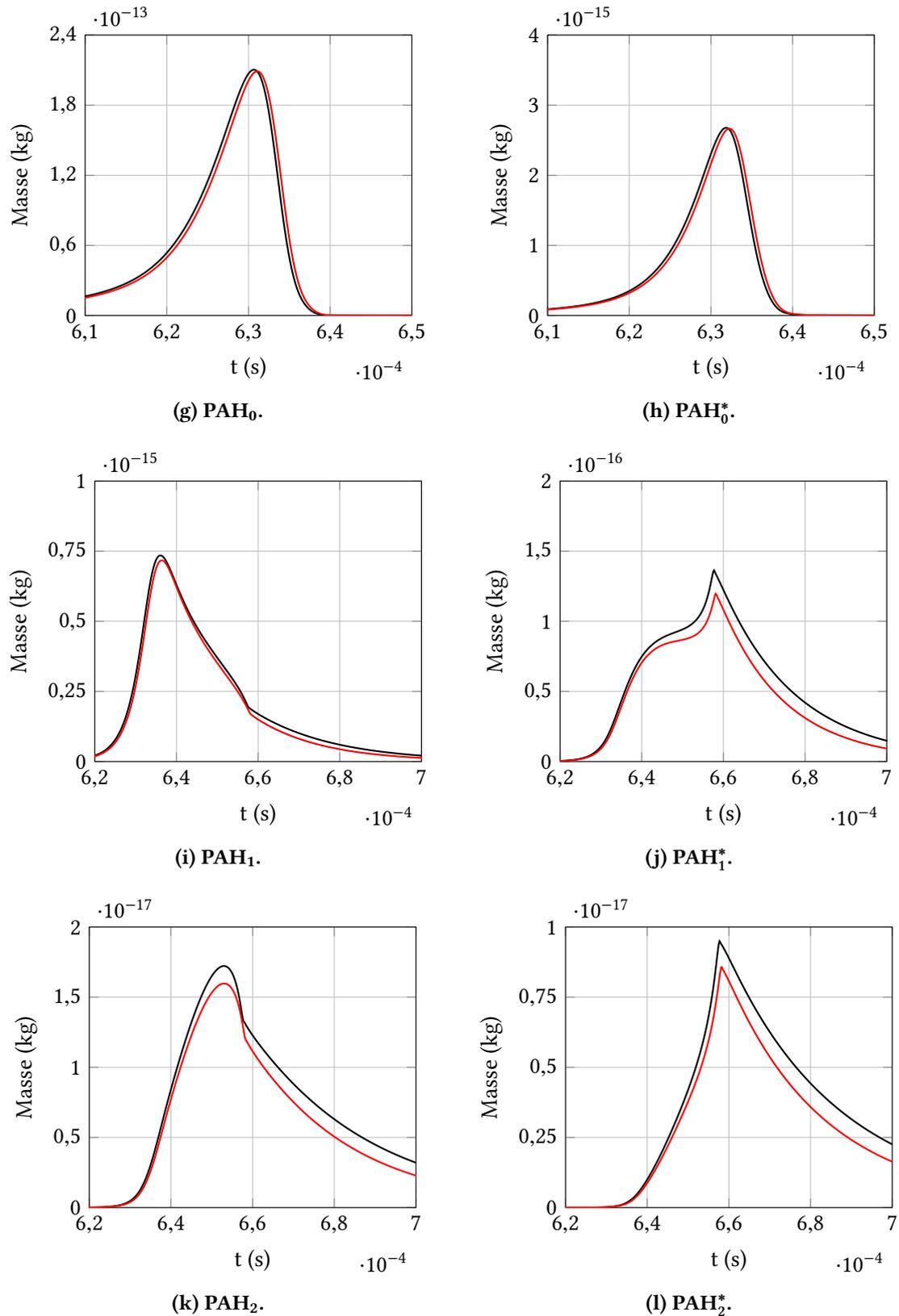


FIGURE 4.8 – Comparaison de l'évolution du diamètre des particules, de la température et de la masse des espèces d'intérêt dans le domaine de calcul en fonction du temps sans agrégats (—) et avec (—).

## Bilan

Dans ce chapitre, on a décrit la mise en place d'un algorithme de collision stochastique entre particules sphériques. Il permet de représenter la coalescence des particules de suie jeunes, assimilées à celles dont le diamètre est inférieur à un diamètre critique  $d_c$ , et la non-coalescence, ou pseudo-agrégation, des particules âgées. Sur un cas-test 0D représentatif, on a montré la bonne convergence de cet algorithme en fonction du nombre initial de particules numériques injectées. On a également introduit les avancées réalisées quant à la modélisation de l'agrégation de sphères dans le solveur SPARTE, et montré, pour le même cas-test 0D, son influence limitée sur les premiers moments de la distribution en taille des sphères, ainsi que sur les interactions entre les phases gazeuse et dispersée. Cette modélisation de l'agrégation, qui n'est pas utilisée dans la suite de ce travail de thèse, doit toutefois être approfondie pour améliorer la caractérisation des émissions et la prise en compte du rayonnement des suies dans de futures applications.

---

## Chapitre 5

# Développement d'un algorithme de réduction adapté à la simulation de grandes populations de particules

---

L'objectif de ce chapitre est de décrire la mise en place d'un algorithme de réduction de population, afin de maîtriser le coût de calcul du modèle de suie en présence d'une grande population de particules. Pour cela, on choisit tout d'abord une méthodologie de réduction, puis on décrit sur un exemple concret la procédure de réduction retenue dans ces travaux.

### Sommaire

---

5.1	Choix d'une méthodologie de réduction de population . . . . .	70
5.2	Description de l'algorithme de réduction de population . . . . .	70
5.2.1	Choix des variables de réduction . . . . .	70
5.2.2	Identification des particules redondantes . . . . .	71
5.2.3	Suppression des particules redondantes . . . . .	74
5.2.4	Limites de l'algorithme . . . . .	75
5.3	Cas-test 1D . . . . .	76
5.3.1	Influence du nombre maximal de particules . . . . .	76
5.3.2	Influence de la période de réduction . . . . .	78

---

Dans l'approche lagrangienne mise en place dans ce travail de thèse, de nouvelles particules numériques sont créées à chaque pas de temps par nucléation, ou pseudo-agrégation dès lors que les poids des sphérules entrant en collision diffèrent, ce qui arrive très souvent en pratique. Le coût CPU et l'occupation mémoire induits par leur nombre en régime permanent peuvent ainsi exploser, même pour une flamme stationnaire de prémélange 1D, avec ou sans limitation du poids des particules à l'injection, avec ou sans considération de leurs interactions. Dans la suite, on doit donc se donner la possibilité de maîtriser le nombre de particules dans le domaine de calcul.

## 5.1 Choix d'une méthodologie de réduction de population

Dans les méthodes de Monte-Carlo à nombre de particules numériques constant, deux procédures peuvent être appliquées en cas d'ajout de particule [61] :

1. **Suppression aléatoire** : On supprime une particule numérique choisie aléatoirement et on répartit sa masse sur les autres, ce qui permet d'assurer la conservation de la masse totale au détriment du nombre de particules.
2. **Fusion** : On fusionne deux particules numériques, ce qui permet de conserver à la fois la masse totale et le nombre de particules. Dans [61], on choisit pour cela la particule de plus petit poids et on identifie dans le reste de la population celle qui minimise une fonction d'erreur de fusion prédéfinie.

Dans ce travail de thèse, l'une de ces deux approches pourrait être mise en œuvre à chaque ajout de particule numérique dans une cellule si leur nombre  $N$  dépassait un seuil prédéfini, noté  $\hat{N}$ . On préfère toutefois définir une procédure de réduction de population plus générale, applicable en début de cycle SPARTE tous les  $k \in \mathbb{N}^*$  pas de temps. Elle doit permettre d'identifier simultanément, dans chaque cellule où  $N$  dépasserait  $\hat{N}$ , tous les paquets de particules pouvant être fusionnées afin de ramener  $N$  en deçà de  $\hat{N}$ . Pour cela, on utilise une structure d'arbre dans l'espace d'état des particules, par analogie avec les *quadtree* ou *octree* employés en adaptation de maillage [17].

## 5.2 Description de l'algorithme de réduction de population

Bien que son implémentation soit générique, i.e. compatible avec un arbre à  $d \in \mathbb{N}^*$  dimensions, on limite la description de l'algorithme aux arbres bidimensionnels utilisés dans la suite.

### 5.2.1 Choix des variables de réduction

On choisit naturellement le diamètre  $d$  des particules comme première variable de réduction, afin de ne pas dégrader leur distribution en taille outre mesure. On exclut en revanche leur vitesse et leur température, car dans une cellule leurs valeurs sont identiques pour toutes les particules, à l'exception de celles éventuellement reçues des cellules voisines à l'étape de transport. On rejette aussi leur position, à laquelle on préfère comme seconde variable de réduction scalaire le temps de séjour restant  $T_s$  des particules dans leur cellule courante, défini sur la figure 5.1.

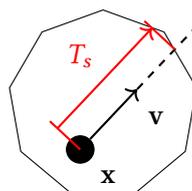


FIGURE 5.1 – Définition du temps de séjour restant d'une particule (●) dans une cellule.  $T_s$  est le temps que mettrait la particule pour atteindre une face de la cellule si elle conservait sa vitesse. Il est, par définition, son temps d'interaction restant avec le gaz et les particules.

On notera la nécessité, pour éviter l'appauvrissement statistique d'une population monodisperse, d'utiliser le couple de variables  $(d, T_s)$  dans l'algorithme de réduction, et non  $d$  seul.

### 5.2.2 Identification des particules redondantes

Les paquets de particules numériques pouvant être fusionnées sont identifiés tous les  $k$  pas de temps, dans chaque cellule où  $N$  dépasse  $\hat{N}$ , par construction d'un arbre bidimensionnel dans l'espace d'état  $(d, T_s)$  précédemment introduit. Pour faciliter la compréhension de l'algorithme mis en place, on considère un exemple de population constituée de 16 particules numériques, présenté sur la figure 5.2, en fixant  $\hat{N}$  à 8. On décrit ci-dessous les étapes successives de construction de l'arbre, en les appliquant simultanément à cette population-exemple :

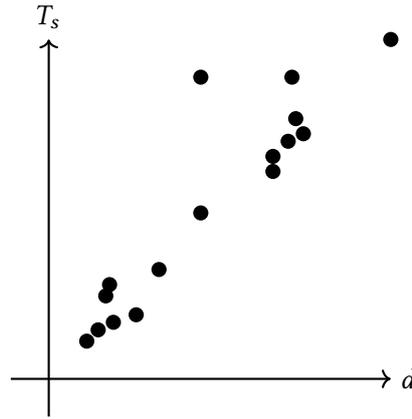
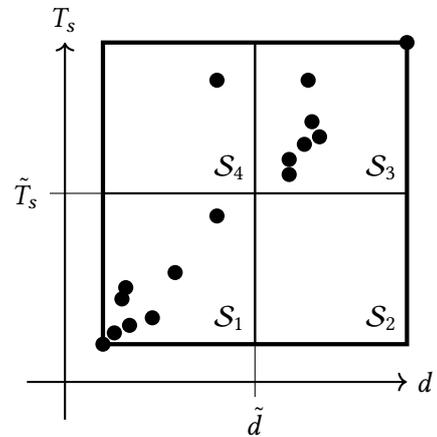


FIGURE 5.2 – Population-exemple de 16 particules numériques dans l'espace d'état  $(d, T_s)$ .

1. On construit le sous-espace  $\mathcal{S}$  formé par les particules numériques.
2. On définit deux échelles caractéristiques de  $\mathcal{S}$  :  $\tilde{d}$  la demi-somme des diamètres minimum et maximum des particules, et  $\tilde{T}_s$  celle de leurs temps de séjour minimum et maximum.
3. On divise le sous-espace  $\mathcal{S}$  en quatre sous-espaces  $\mathcal{S}_i$  identiques :

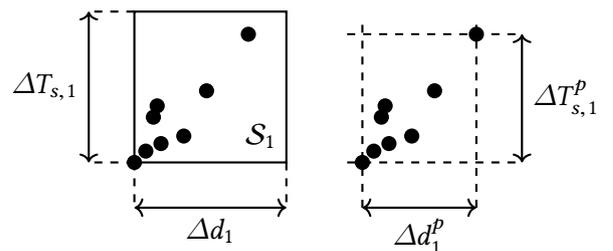
$$\mathcal{S} = \bigcup_{i=1}^4 \mathcal{S}_i. \quad (5.1)$$



4. On calcule la dispersion dans chaque sous-espace  $\mathcal{S}_i$ , avec correction de son anisotropie éventuelle :

$$\sigma_i = \sqrt{\sum_{\varphi} \left[ \frac{\beta_{i,\varphi}}{\|\beta_i\|_2} \right]^2 \cdot \left[ \frac{\Delta\varphi_i^p}{\tilde{\varphi}} \right]^2}, \quad (5.2)$$

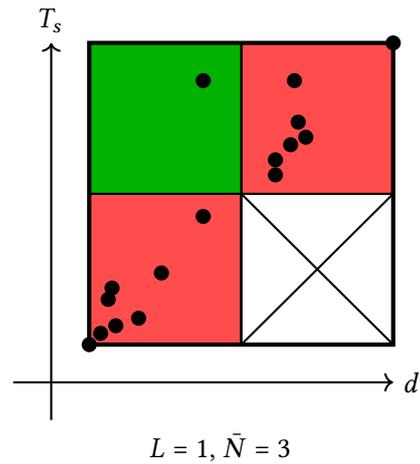
où  $\beta_i$  est le vecteur allongement de  $\mathcal{S}_i$  dont les composantes sont indicées par  $\varphi$  :



$$\beta_{i,\varphi} = \left[ \frac{\Delta\varphi_i}{\tilde{\varphi}} \right]^{-1} \cdot \max \left( \frac{\Delta d_i}{\tilde{d}}, \frac{\Delta T_{s,i}}{\tilde{T}_s} \right), \quad (5.3)$$

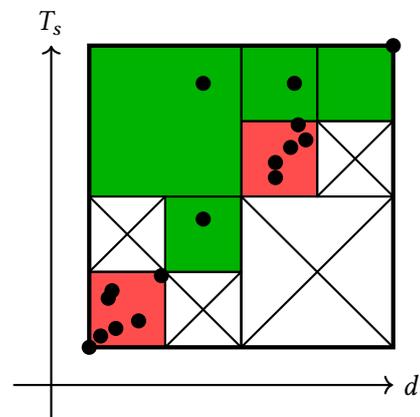
$\varphi$  est successivement  $d$  et  $T_s$ .  $\sigma_i$  est une fonction strictement décroissante du niveau de ramification de l'arbre  $L$ , et  $\beta_i$  en est une fonction constante.

5. On évalue la convergence de la ramification dans chaque sous-espace  $\mathcal{S}_i$  : on la considère atteinte (■) si la dispersion  $\sigma_i$  est inférieure à 1 % de celle calculée dans le sous-espace  $\mathcal{S}$ ,  $\sigma_{\mathcal{S}}$ , et non atteinte (■) sinon.
6. On actualise le nombre de sous-espaces non vides  $\bar{N}$  i.e. le nombre de paquets de particules pouvant être fusionnés. Si  $\bar{N}$  est inférieur à  $\hat{N}$  et que la convergence est atteinte dans chaque sous-espace, on passe à l'étape 10. Si  $\bar{N} \leq \hat{N}$  et que la convergence n'est pas atteinte partout, on passe à l'étape 7. Si  $\bar{N} > \hat{N}$ , on passe à l'étape 8.

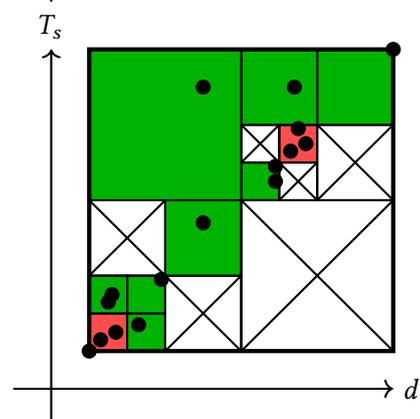


7. On recommence les étapes 3 à 5, sans modifier  $\sigma_{\mathcal{S}}$ , pour l'ensemble des sous-espaces  $\mathcal{S}_i$ , dans lesquels la convergence n'est pas atteinte. On passe à l'étape 6.

$$L = 2 ; \bar{N} = 6$$

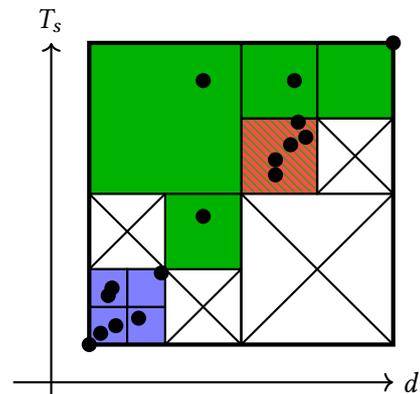
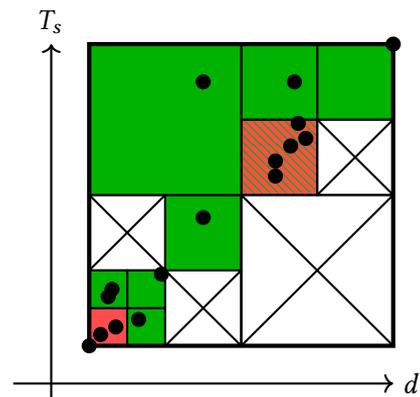
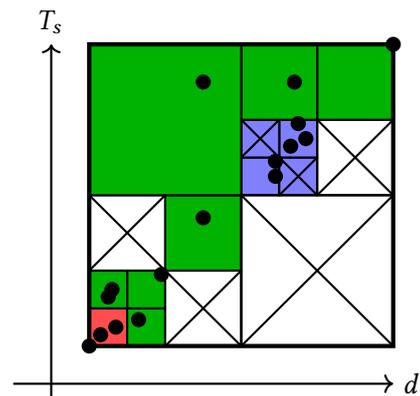


$$L = 3 ; \bar{N} = 10$$

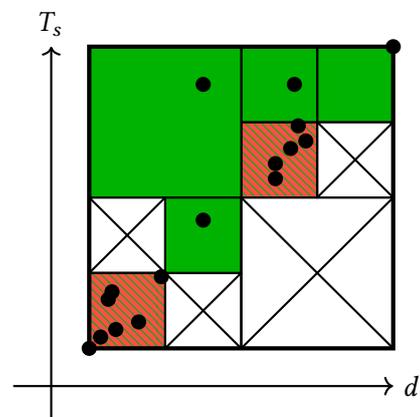


8. On monte au niveau de ramification précédent pour supprimer les sous-espaces hérités de celui de dispersion minimale (■) et on descend au niveau de ramification maximal.
9. On actualise le nombre de paquets de particules pouvant être fusionnées  $\bar{N}$ , tous sous-espaces confondus. On retourne à l'étape 8 si  $\bar{N} > \hat{N}$ , et à l'étape 10 sinon.

$$L = 3 ; \bar{N} = 9$$



$$L = 2 ; \bar{N} = 6$$



10. On définit l'ensemble des paquets de particules pouvant être fusionnées à partir de tous les sous-espaces non vides.

### 5.2.3 Suppression des particules redondantes

Les particules numériques sont remplacées, dans chaque sous-espace  $\mathcal{S}_i$  non vide identifié, par une nouvelle entité de poids  $\bar{w}$ , de diamètre  $\bar{d}$ , de température  $\bar{T}$ , de position  $\bar{x}$  et de vitesse  $\bar{v}$ . Pour cela, on définit le système d'équations (5.4), qui assure la conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie :

$$\begin{cases} \bar{w}\bar{d}^3 &= \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^3, \\ \bar{w}\bar{d}^3 \bar{x} &= \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^3 x_p, \\ \bar{w}\bar{d}^3 \bar{v} &= \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^3 v_p, \\ \bar{w}\bar{d}^3 \bar{T} &= \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^3 T_p, \end{cases} \quad (5.4)$$

Comme pour la coalescence, on fait l'hypothèse que les écarts de température dans  $\mathcal{S}_i$  sont suffisamment petits pour déduire  $\bar{T}$  sans considération de la capacité calorifique des particules, supposée constante.

On notera qu'une équation supplémentaire est nécessaire à la fermeture du système (5.4). Deux choix sont alors possibles : conserver le nombre de particules physiques,

$$\bar{w} = \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p, \quad (5.5)$$

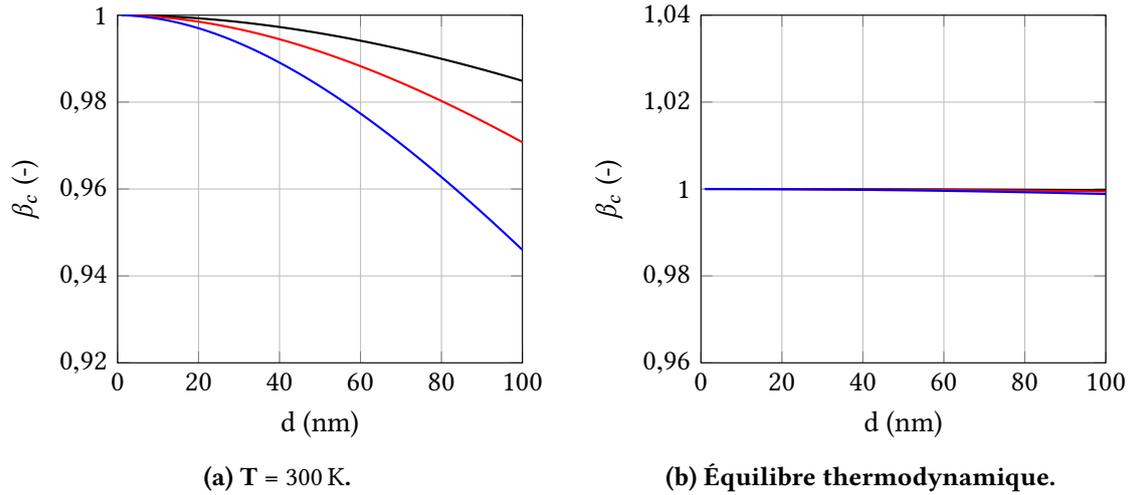
ou conserver leur surface totale,

$$\bar{w}\bar{d}^2 = \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^2. \quad (5.6)$$

Dans ce travail de thèse on utilisera la deuxième solution, ce qui assure aussi la conservation du produit poids  $\times$  taux d'avancement dans  $\mathcal{S}_i$ , pour toute cellule sans collision ni limitation des sources de masse au cours du cycle courant. De fait, le taux d'avancement des réactions d'oxydation par  $O_2$  ou  $OH$  et d'addition de  $C_2H_2$  est toujours proportionnel au carré du diamètre des particules. Il peut aussi être considéré comme tel, en première approximation, pour les réactions de condensation des PAH. Compte tenu de la masse et de la taille des sphérules de suie, les termes  $1/\mathcal{M}$  et  $d_{PAH}$  de la fréquence de collision  $\beta_F$  des suies et des PAH (cf. (3.21)) deviennent en effet rapidement négligeables devant les termes  $1/\mathcal{M}_{PAH}$  et  $d$  respectivement :

$$\begin{aligned} \beta_F &= \beta_c \left[ \frac{\pi \mathcal{R} T_g}{2} \left( \frac{1}{\mathcal{M}_{PAH}} + \frac{1}{\mathcal{M}} \right) \right]^{1/2} (d_{PAH} + d)^2, \\ &\sim \beta_c \left[ \frac{\pi \mathcal{R} T_g}{2 \mathcal{M}_{PAH}} \right]^{1/2} d^2, \end{aligned} \quad (5.7)$$

avec  $\beta_c$  le facteur de correction pour le régime continu, proche de l'unité dans les gaz brûlés comme le montre la figure 5.3.



**FIGURE 5.3 – Facteur de correction de la fréquence de collision pour le régime continu en fonction du diamètre des particules : PAH<sub>0</sub> (—), PAH<sub>1</sub> (—) et PAH<sub>2</sub> (—). La phase gazeuse est un mélange stoechiométrique C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/air à pression atmosphérique, à 300 K (5.3a) et à l'équilibre thermodynamique à pression et enthalpie constantes (5.3b).**

Dans les cellules où  $N$  dépassait  $\hat{N}$ , la résolution du système (5.4) et de l'équation (5.6) pour chaque sous-espace  $\mathcal{S}_i$  garantit, lors de la substitution des particules, la conservation de la masse, de la quantité de mouvement, de l'énergie, de la fraction volumique et du diamètre de Sauter  $d_{32}$  de la phase dispersée :

$$d_{32} = \frac{\sum_{j=1}^N w_j d_j^3}{\sum_{j=1}^N w_j d_j^2} = \frac{\sum_{i=1}^{\hat{N}} \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^3}{\sum_{i=1}^{\hat{N}} \sum_{p \in \mathcal{S}_i} w_p d_p^2} = \frac{\sum_{i=1}^{\hat{N}} \bar{w}_i \bar{d}_i^3}{\sum_{i=1}^{\hat{N}} \bar{w}_i \bar{d}_i^2}. \quad (5.8)$$

Deux autres grandeurs sont conservées sous conditions :

1. le nombre de particules si la dispersion tend vers 0 dans tous les sous-espaces non vides,
2. les sources de masse des réactifs R et P de la réaction d'évolution générique des particules (3.1), si aucune collision n'a lieu et aucune limitation ne s'active au cours du cycle courant.

### 5.2.4 Limites de l'algorithme

Pour simuler des cas-tests de complexité croissante, l'algorithme de réduction a dû être implémenté dès la mise en place des sous-modèles d'évolution chimique, en amont des méthodes de limitation des sources de masse et des modèles d'interaction entre particules. C'est pour cette raison que l'équation (5.6) de conservation de la surface totale des sphérules, en lien avec la conservation de grandeurs chimiques, a été privilégiée. Ce choix, qui n'a pas été remis en cause par la suite, peut toutefois induire un biais et ouvre donc une première voie d'amélioration possible de la méthode proposée. Une deuxième voie d'amélioration serait la redéfinition de la dispersion et de son critère de convergence. En effet, l'équation (5.2) suppose que l'allongement du sous-espace initial ( $= f(\Delta\varphi)$ ) est représentatif de celui des sous-espaces réellement formés par les paquets de particules identifiés ( $= f(\Delta\varphi^p)$ ), ce qui peut dégrader la précision de l'algorithme. Enfin, une troisième voie d'amélioration est la généralisation de la méthode de réduction aux agrégats de sphérules.

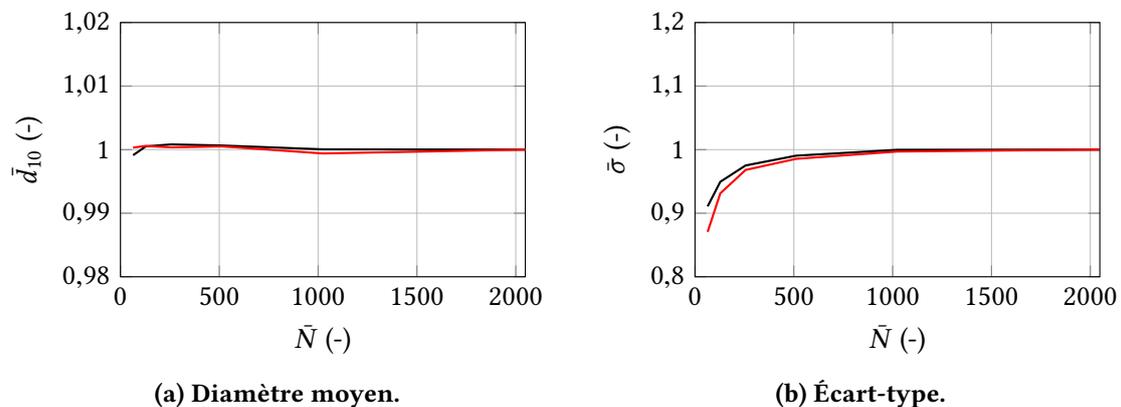
### 5.3 Cas-test 1D

On considère une flamme stationnaire de prémélange  $C_2H_4$ /air, simulée sur un domaine 1D de 40 mm de longueur, décrite en détail au chapitre 6. À l'entrée du domaine, un mélange de richesse 2,64 est injecté par une entrée subsonique à la température de 298 K et à la vitesse de  $6,73 \text{ cm.s}^{-1}$ . Une sortie subsonique à pression atmosphérique, associée à des conditions acoustiques de non-réflexion, est utilisée en sortie. Le profil de température est imposé en tout point, et l'état initial de la phase gazeuse prédéterminé à l'aide de *Cantera*. Les modèles d'évolution chimique et de collision de la phase dispersée, initialement vide, sont tous activés. Exceptionnellement, pour évaluer les performances de l'algorithme de réduction, les propriétés de toutes les particules traversant deux plans fictifs situés 20 et 30 mm en aval de l'entrée sont stockées sur une période de 240 ms, équivalente à deux traversées de domaine.

#### 5.3.1 Influence du nombre maximal de particules

On choisit en premier lieu d'appliquer l'algorithme de réduction tous les 100 pas de temps et de faire varier le nombre maximal de particules numériques par cellule.  $\tilde{N}$  est ainsi fixé initialement à 64 et doublé à chaque nouvelle simulation jusqu'à convergence du diamètre moyen des particules et de son écart-type dans les plans de mesure. Dans la suite, le dernier des six cas-tests nécessaires, pour lequel le critère de dispersion est aussi respecté dans tous les arbres construits – i.e. pour lequel la dispersion  $\sigma_i$  calculée dans chaque sous-espace du niveau maximal des arbres construits (cf. (5.2)) est inférieur à 1 % de celle dans le sous-espace global de ces mêmes arbres – servira de référence.

Comme reporté sur la figure 5.4, l'écart à la référence est toujours inférieur à 1 % en valeur absolue pour le diamètre moyen et à 13 % pour l'écart-type. On montre donc la capacité de l'algorithme à reproduire le premier moment de la distribution en taille des particules même pour  $\tilde{N}$  petit et la dégradation, prévisible, de son second moment quand  $\tilde{N}$  diminue. Ce résultat, par analogie avec les cas-tests présentés au chapitre 4, doit à nouveau être mis en perspective avec le coût CPU, croissant avec le nombre de particules, d'où le compromis perpétuel à faire entre prédictibilité de l'écart-type et temps de calcul.



**FIGURE 5.4 – Moments statistiques de la distribution en taille des particules en fonction de  $\tilde{N}$  dans les plans à 20 mm (—) et 30 mm (—) en aval de l'entrée du domaine.**  
Normalisation par la référence : (a) 25,4 nm / (b) 2,64 nm à 20 mm ; (a) 26,9 nm / (b) 2,60 nm à 30 mm.

Pour aller plus loin, on définit 25 classes de particules, dont la première est centrée sur le diamètre de nucléation  $d_0$ . Il est alors possible de comparer, avec un bruit numérique moindre, la distribution en taille des sphérules traversant les plans de mesure pour chaque valeur du nombre maximal de particules par cellule, comme sur les figures 5.5 et 5.6. On constate la bonne restitution de la forme et de la dynamique de la distribution, y compris pour  $\tilde{N}$  faible. Deux pics sont ainsi observés : le premier, assimilable à un Dirac, pour les sphérules créées par nucléation, et un second, en cloche, pour les particules de grande

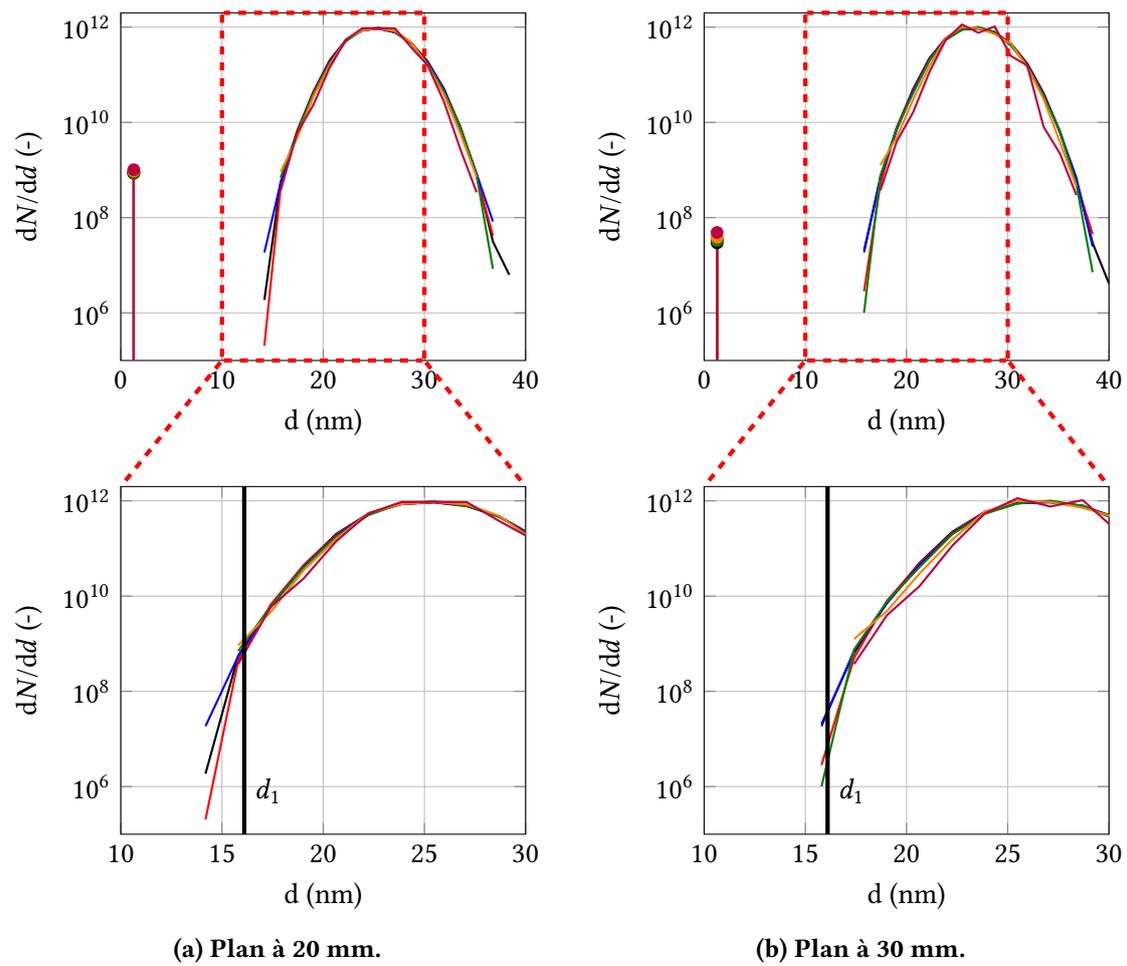


FIGURE 5.5 – Distributions en taille des particules en fonction de  $\tilde{N}$  dans les plans à 20 mm et 30 mm en aval de l'entrée du domaine : 2048 (—), 1024 (—), 512 (—), 256 (—), 128 (—) et 64 (—).

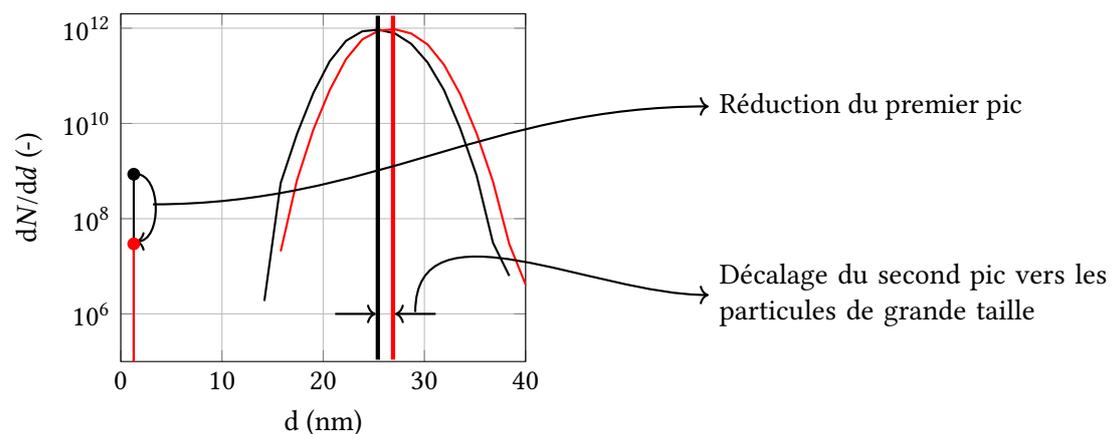


FIGURE 5.6 – Dynamique de la distribution en taille des particules pour  $\tilde{N} = 2048$  entre les plans à 20 mm (—) et à 30 mm (—) en aval de l'entrée du domaine.

taille. Ce dernier tend à être minoré par  $d_1$ , le diamètre des sphérules formées par coalescence de deux

particules de diamètre  $d_c$  :

$$d_1 = 2^{1/3} d_c, \quad (5.9)$$

avec  $d_c$  le diamètre limite de coalescence. Cela indique une transition rapide vers la pseudo-agrégation en amont du premier plan de mesure. En aval, on notera la réduction du premier pic et l'augmentation du diamètre moyen associé au second, du fait de la coalescence résiduelle et de la croissance des particules par des processus chimiques.

La forme de la distribution en taille des particules est par ailleurs cohérente avec les mesures réalisées par Camacho et al. [12] sur une configuration analogue. En raison du maintien de la nucléation et de la croissance des particules, elle est en effet bi-modale directement en aval de la flamme. Elle tend ensuite vers une distribution mono-modale avec la réduction de la nucléation, ce qui est visible sur les figures 5.5 et 5.6. Aussi, les mesures expérimentales de l'étude de Camacho et al., mises à disposition par l'*International Sooting Flame Workshop*, montrent la persistance d'un pic dans la distribution au niveau des particules de petit diamètre, et ce même loin du brûleur.

### 5.3.2 Influence de la période de réduction

On choisit dans un second temps de figer le nombre maximal de particules numériques par cellule à 256 et de faire varier la période de réduction. Trois cas-tests, pour lesquels l'algorithme est appliqué tous les 1, 10 et 1000 cycles, sont ainsi ajoutés au précédent ( $\tilde{N} = 256$  ;  $k = 100$ ), qui sert de nouvelle référence.

Comme montré sur la figure 5.7, l'écart à la référence est toujours inférieur à 1 % en valeur absolue pour le diamètre moyen et à 3 % pour l'écart-type. La période de réduction n'a donc que peu d'influence sur la capacité de l'algorithme à reproduire les deux premiers moments de la distribution en taille des particules. En revanche, le coût CPU augmente pour ses petites valeurs, à cause de la multiplication des appels à la procédure de réduction et de l'écriture des fichiers de suivi associés, ainsi que pour ses plus grandes valeurs, du fait de la croissance de la population de sphérules entre deux appels.

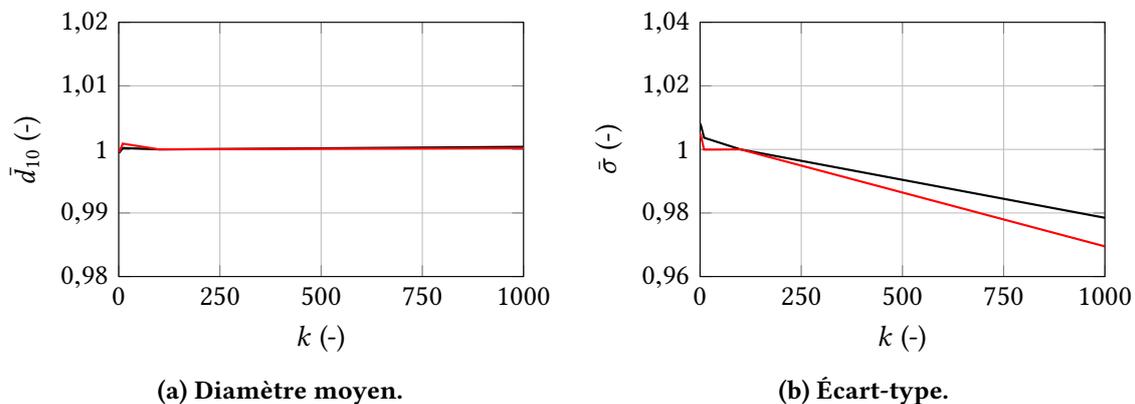


FIGURE 5.7 – Moments statistiques de la distribution en taille des particules en fonction de  $k$  dans les plans à 20 mm (—) et 30 mm (—) en aval de l'entrée du domaine. Normalisation par la référence : (a) 25,4 nm / (b) 2,58 nm à 20 mm ; (a) 26,9 nm / (b) 2,52 nm à 30 mm.

## Bilan

Dans ce chapitre, on a décrit la mise en place d'un algorithme de réduction de population. Cet algorithme, de type *quadtree*, doit permettre de maîtriser le temps de restitution de l'approche lagrangienne utilisée pour modéliser l'évolution des particules de suie. On a aussi montré, sur un cas-test 1D représentatif, sa capacité à conserver la forme et la dynamique de la distribution en taille des sphérules en fonction de sa période d'application et du nombre maximal de particules numériques autorisé par cellule.



---

## Chapitre 6

# Évaluation du modèle de suie sur des flammes stationnaires prémélangées $C_2H_4$ /air

---

L'objectif de ce chapitre est d'évaluer les capacités de la méthode couplée Euler-Lagrange mise en place précédemment à prédire les profils de fraction volumique de suie et de diamètre moyen des particules sur un cas de validation élémentaire de flamme laminaire stationnaire de prémélange. Ce cas-test constitue en effet une étape indispensable vers l'application de cette méthode à une configuration de complexité aéronautique. Le travail réalisé dans ce chapitre a fait l'objet d'une publication soumise à *Energy*, disponible en annexe [A](#).

### Sommaire

---

6.1	Présentation de la configuration. . . . .	82
6.1.1	Géométrie. . . . .	82
6.1.2	Mesures expérimentales. . . . .	82
6.1.3	Points de fonctionnement . . . . .	83
6.2	Modélisation de la configuration et méthodes numériques . . . . .	83
6.2.1	Domaine de calcul et conditions aux limites . . . . .	83
6.2.2	Méthodes numériques . . . . .	83
6.2.3	Modèles de transport . . . . .	84
6.3	Analyse des résultats. . . . .	85
6.3.1	Phase dispersée. . . . .	85
6.3.2	Phase gazeuse . . . . .	85
6.3.3	Résultats complémentaires. . . . .	85

---

Pour évaluer les performances de la méthode couplée Euler-Lagrange développée dans ce travail de thèse, on cherche à simuler une flamme stationnaire de prémélange C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/air. On s'intéresse en particulier à la configuration de Xu et al. [111], déjà modélisée avec le code CEDRE dans les travaux de Dorey [20, 21] et identifiée comme une cible de validation par l'*International Sooting Flame Workshop*.

## 6.1 Présentation de la configuration

### 6.1.1 Géométrie

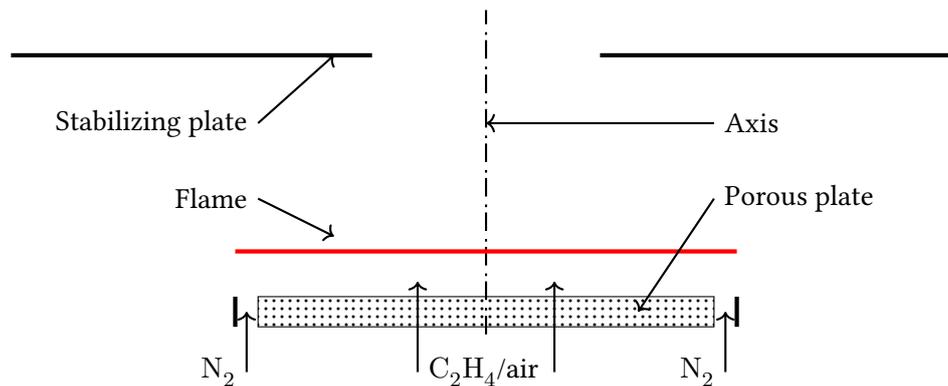


FIGURE 6.1 – Représentation en 2D de la configuration de Xu et al.

Dans la configuration de Xu et al., schématisée sur la figure 6.1, un brûleur McKenna refroidi à l'eau est utilisé. Le prémélange C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/air est ainsi injecté à travers un poreux de 60 mm de diamètre. La flamme, plane et laminaire, est stabilisée en aval par une plaque de 125 mm de diamètre, percée d'un orifice de 30 mm de diamètre aligné sur l'axe du brûleur et située 32 mm au-dessus de sa sortie. Un écoulement annulaire cocourant (ou *coflow*) de N<sub>2</sub> est injecté autour du poreux par un anneau de 6 mm de large, afin de prévenir la formation de flammes de diffusion au contact de l'air environnant. Les produits de combustion sont évacués à l'aide d'une ventilation, non représentée sur la figure 6.1, montée 700 mm au-dessus de la plaque de stabilisation. L'ensemble du dispositif expérimental est protégé des perturbations extérieures par des écrans et une enceinte en plastique, également non représentés.

### 6.1.2 Mesures expérimentales

	Méthode	Incertitude
<b>Phase dispersée</b>		
Fraction volumique $f_v$ (1)	Laser Extinction	$\leq 10\%$ si $f_v \geq 0,1$ ppm
Fraction volumique $f_v$ (2)	Isokinetic Sampling	$\leq 15\%$
Diamètre des particules primaires $d$	Thermophoretic Sampling + TEM	$\leq 10\%$
<b>Phase gazeuse</b>		
Fractions molaires majoritaires $X_k$	Isokinetic Sampling + GC	$\leq 15\%$ si $X_k \geq 0,5\%$
Température $T$	Multiline Emission	$\leq 50$ K
Vitesse axiale $V$	Laser Velocimetry	$\leq 5\%$

TABLE 6.1 – Grandeurs mesurées par Xu et al. TEM : *Transmission Electron Microscopy*, GC : *Gas Chromatography*.

Les grandeurs mesurées par Xu et al. sont partiellement reportées dans le tableau 6.1 pour les phases gazeuse et dispersée. On notera en particulier que le diamètre des particules primaires mesuré est comparable à celui des sphérules simulées. Par ailleurs, le lecteur est ici invité à consulter [111] pour plus de détails sur le protocole suivi et les techniques mises en œuvre.

### 6.1.3 Points de fonctionnement

Richesse (-)	Pression (atm)	Vitesse (cm.s <sup>-1</sup> )	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> (%vol.)	O <sub>2</sub> (%vol.)	N <sub>2</sub> (%vol.)
2,34	1	6,73 (6,84)	14,08	18,05	67,87
2,64	1	6,73 (6,84)	15,60	17,73	66,67
2,94	1	6,73 (5,31)	17,0	17,4	65,6

**TABLE 6.2 – Paramètres des flammes de prémélange de Xu et al.** La vitesse indiquée sans parenthèse est celle prescrite par l’ISF en sortie de poreux. La vitesse entre parenthèses est celle reportée par Xu et al. dans [111].

Parmi les cinq flammes C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/air étudiées par Xu et al., trois ont été identifiées par l’*International Sooting Flame Workshop* (ISF) comme une cible de validation. Leurs paramètres, normalisés pour faciliter la comparaison des résultats de simulation entre équipes de recherche, sont présentés dans le tableau 6.2.

## 6.2 Modélisation de la configuration et méthodes numériques

### 6.2.1 Domaine de calcul et conditions aux limites

On fait l’hypothèse que la configuration 2D axisymétrique de Xu et al. peut être réduite à une configuration 1D. On notera toutefois que cette simplification, très largement répandue dans la littérature, conduit à une vitesse axiale décroissante – en lien avec la diminution de la température imposée – en aval de la flamme, donc en désaccord avec les mesures expérimentales, ce qui ne serait pas le cas en 2D comme rapporté par Sirignano et Blanquart dans [97]. Une sous-estimation de la fraction volumique de suie allant jusqu’à un facteur 1,5 en 1D a également été constatée. Celle-ci est jugée tout à fait acceptable.

Sous l’hypothèse précédente, on considère un domaine 1D de 40 mm de longueur. Le maillage est structuré, constitué de 210 cellules dans la direction longitudinale et raffiné au niveau du front de flamme, où sa taille caractéristique minimale atteint 15  $\mu\text{m}$ <sup>1</sup>. À l’entrée du domaine, située à la sortie du poreux dans le montage de Xu et al., un mélange C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/air de richesse  $\phi$  est injecté par une entrée subsonique, à la vitesse indiquée sans parenthèse dans le tableau 6.2 et à la température de 298 K. Une sortie subsonique à pression atmosphérique, associée à des conditions acoustiques de non-réflexion, est utilisée en sortie. Dans la direction transverse, des conditions de symétrie sont imposées.

### 6.2.2 Méthodes numériques

Dans le solveur CHARME, l’intégration temporelle est réalisée par la méthode implicite de Gear d’ordre 2. Les flux hyperboliques sont calculés par un schéma HLLC [103]. Un schéma MUSCL [50] d’ordre 2 est utilisé pour la méthode de discrétisation spatiale. Dans le solveur SPARTE, le nombre maximal de particules numériques par cellule dont l’influence sur la distribution en taille des sphérules (*Particle Size Distribution*, ou PSD) a été étudiée au chapitre 5 est pris égal à 256. Cela est jugé suffisant pour la prédiction des deux premiers moments de la PSD. L’algorithme de réduction est, lui, appliqué

1. Dans des conditions équivalentes, l’épaisseur thermique  $\delta_{th}$  d’une flamme de prémélange librement propagative est de 1 mm à la richesse 2,64 :  $\delta_{th} = (T^b - T^u) / \max(\nabla T)$ , avec  $T^u$  et  $T^b$  les températures des gaz frais et des gaz brûlés.

tous les 100 cycles. Le pas de temps est fixé à 1  $\mu$ s dans les deux solveurs, et le temps physique de simulation choisi suffisamment grand pour obtenir une solution stationnaire.

Dans ces travaux, les échanges thermiques avec le *coflow* de N<sub>2</sub>, ceux entre les phases gazeuse ou dispersée et le brûleur, ainsi que le rayonnement des particules de suie ne sont pas pris en compte. Par conséquent, un profil de température, préconisé par l'ISF pour chaque point de fonctionnement, est imposé en tout point du maillage. Le premier point de ce profil, identique quelle que soit la richesse, détermine en particulier la température d'injection du mélange de gaz frais, mentionnée précédemment. La composition initiale de la phase gazeuse dans le domaine est par ailleurs calculée sous *Cantera* avec ce même profil, en négligeant la fraction volumique de la phase dispersée, nulle à  $t = 0$ .

Pour imposer le profil de température, la méthode développée par Dorey [20] dans sa thèse est reprise. Elle consiste à ajouter un terme source  $\dot{\omega}_P$  à l'équation de transport de l'énergie totale  $e_t$  :

$$\begin{aligned} \dot{\omega}_P &= \frac{\rho e_t(T_P) - \rho e_t(T_L)}{\Delta t}, \\ &\sim \rho \frac{e(T_P) - e(T_L)}{\Delta t}, \end{aligned} \quad (6.1)$$

avec  $T_P$  la température à imposer,  $T_L$  la température locale,  $e$  l'énergie interne et  $\Delta t$  le pas de temps. Contrairement à l'étude menée par Dorey, les abscisses du profil n'ont toutefois pas à être modifiées en cours de calcul dans ce travail de thèse. La position de la flamme dans le domaine est en effet invariante, la température étant prescrite en tout point.

### 6.2.3 Modèles de transport

Afin de comparer mesures expérimentales et simulations numériques, les flux de diffusion des espèces sont calculés par l'approximation de Hirschfelder et Curtiss (intégrée dans le code CEDRE pour ces travaux et validée par comparaison avec *Cantera*) [52], plus réaliste pour une configuration de flamme laminaire que celle d'un nombre de Schmidt constant par espèce formulée au chapitre 1 :

$$\mathbf{J}_k = -\rho Y_k \left[ D_k \frac{M_k}{M} \nabla X_k + \left( \sum_{k=1}^N D_k \frac{M_k}{M} \nabla X_k \right) \right], \quad (6.2)$$

avec  $D_k$  le coefficient de diffusion de l'espèce  $X_k$  dans le mélange gazeux :

$$D_k = (1 - Y_k) \left( \sum_{j \neq k} \frac{X_j}{\mathcal{D}_{jk}} \right)^{-1}, \quad (6.3)$$

et  $\mathcal{D}_{jk}$  le coefficient de diffusion binaire de l'espèce  $X_j$  dans l'espèce  $X_k$ . Les flux de diffusion de quantité de mouvement et de chaleur sont déterminés par les équations (1.6) et (1.11). On notera toutefois que, sans cisaillement et avec température imposée, leurs contributions à la solution stationnaire recherchée s'effacent devant celles des flux de diffusion des espèces.

Pour rappel, la diffusion des espèces chimiques sous l'action des gradients de température n'est pas prise en compte dans la phase gazeuse et ne le sera pas non plus dans la phase dispersée. La variation de vitesse des particules qu'induirait l'effet thermophorèse, donnée par l'équation (6.4) [59], est en effet supposée négligeable devant la vitesse de l'écoulement  $\mathbf{V}$  :

$$\mathbf{V}_T = -0,55 \frac{\mu}{\rho T} \nabla T. \quad (6.4)$$

À titre d'exemple, le rapport  $\|\mathbf{V}_T\| / \|\mathbf{V}\|$  est toujours inférieur à 0,6 % en aval de la région de nucléation dans le cas  $\phi = 2,64$ .

## 6.3 Analyse des résultats

### 6.3.1 Phase dispersée

Les profils de fraction volumique  $f_v$  et de diamètre moyen  $d_{10}$  des particules obtenus avec CEDRE sont comparés aux mesures expérimentales sur la figure 6.2 pour les trois cas considérés. Comme attendu,  $f_v$  et  $d_{10}$  sont des fonctions croissantes de la richesse et de la distance au brûleur. À la richesse 2,34, la fraction volumique de suie est sous-estimée d'un facteur 4 et le diamètre moyen des particules d'un facteur 2 jusqu'à 20 mm en aval de l'entrée du domaine. On notera que, sur une configuration similaire, Eberle et al. [23] ont aussi observé une sous-évaluation de  $f_v$  d'un facteur 2 à la richesse 2,3 avec le même mécanisme de nucléation couplé à un modèle de suie sectionnel. Au-delà de 15 mm en aval de l'entrée du domaine, la fraction volumique de suie est sous-estimée d'un facteur 1,4 pour  $\phi = 2,64$ , et surestimée dans les mêmes proportions pour  $\phi = 2,94$ . En deçà, elle est surévaluée dans les deux cas, du fait de la précocité de la nucléation et de la croissance des particules. Le diamètre moyen est enfin sous-estimé d'un facteur 1,4 à la richesse 2,94, tandis que l'écart aux mesures expérimentales est très réduit à la richesse intermédiaire.

Dans le but d'évaluer l'influence du diamètre critique  $d_c$  – le diamètre limite de coalescence – sur le profil de  $d_{10}$ , deux nouvelles simulations sont mises en œuvre pour les trois richesses, en le fixant successivement à 9,1 et 18 nm. Les profils de diamètre moyen des particules obtenus sont présentés sur la figure 6.2, ceux de fraction volumique ne sont, eux, pas ajoutés car non modifiés outre mesure. La transition de la coalescence à la pseudo-agrégation, associée à  $d_c$  par construction, se manifeste par la saturation du diamètre des sphérules, particulièrement visible aux richesses 2,64 et 2,94. Avec l'augmentation de  $d_c$ , elle intervient toujours plus en aval du brûleur, ce qui conduit à la croissance du diamètre moyen. Pour  $\phi = 2,34$ , la transition vers la pseudo-agrégation se produit très en aval, si bien que son influence n'est perceptible qu'au-delà de 25 mm au-dessus du brûleur quel que soit  $d_c$ . Dans la suite de ce travail de thèse, le diamètre critique  $d_c$  sera fixé à 18 nm. Cette valeur assure en effet un bon compromis en ce qui concerne les écarts aux mesures expérimentales pour  $\phi = 2,64$  et  $\phi = 2,94$ . À titre indicatif, elle est égale au double de la valeur utilisée par Rodrigues dans sa thèse [90] pour décrire la transition entre particules sphériques et agrégats.

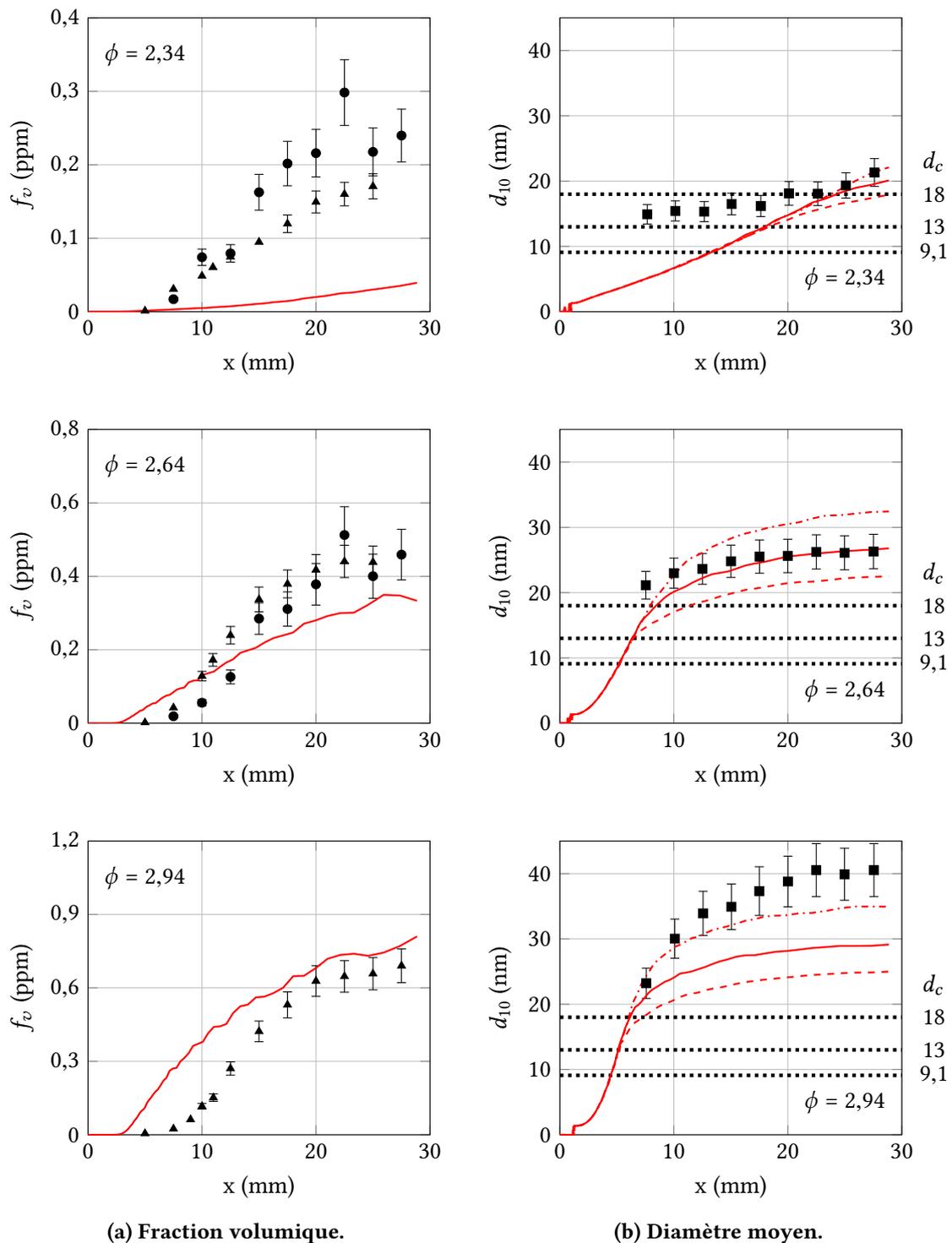
### 6.3.2 Phase gazeuse

Les profils de fraction molaire obtenus avec CEDRE pour les espèces majoritaires sont comparés aux mesures expérimentales sur la figure 6.3. Ceux des produits de combustion CO, CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O, ainsi que de l'intermédiaire réactionnel C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, sont en bon accord avec les travaux de Xu et al. aux trois richesses, à l'exception du premier point du profil de fraction molaire d'acétylène pour  $\phi = 2,34$ . Les écarts à l'expérience ne dépassent 100 % que pour le C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, au niveau du premier point des profils et en aval dès 18 mm au-dessus du brûleur pour les trois richesses. Comme indiqué dans le tableau 6.1, l'incertitude est néanmoins supérieure à 15 % pour les fractions molaires de cette espèce. Des différences importantes sont, en outre, aussi reportées pour l'éthylène dans l'étude précédemment menée par Dorey [20, 21], dans laquelle un mécanisme plus détaillé incluant 70 espèces et 463 réactions est tabulé et couplé au modèle de suie semi-empirique de Leung.

### 6.3.3 Résultats complémentaires

Trois études paramétriques, détaillées en annexe, ont été menées dans le cas  $\phi = 2,34$ , pour lequel les écarts aux mesures expérimentales sur la fraction volumique de suie et le diamètre moyen des particules sont les plus grands :

1. Augmentation de l'efficacité de collision des PAH :  $f_v$  et  $d_{10}$  augmentent avec le taux de condensation, et ce malgré la baisse du taux de nucléation des particules. La condensation des radicaux est en outre négligeable devant celle des molécules quelle que soit la valeur retenue pour l'efficacité de collision  $\gamma_P$  (cf. (3.20)).



**FIGURE 6.2 – Fraction volumique de suie et diamètre moyen des particules en fonction de la distance au brûleur : CEDRE ( $d_c = 9,1$  nm : ---, 13 nm : —, 18 nm : -.-), Xu et al. (Laser Extinction : ▲, Isokinetic Sampling : ●, Thermophoretic Sampling : ■). Les mesures de fraction volumique par Isokinetic Sampling, moins précises, ne sont fournies qu'à titre indicatif.**

- Augmentation de la vitesse de réaction de croissance en surface :  $f_v$  et  $d_{10}$  augmentent avec le taux d'addition d'acétylène, sans toutefois modifier le profil de fraction molaire de cette espèce. Le taux de nucléation des particules diminue aussi dans une moindre mesure du fait de la condensation

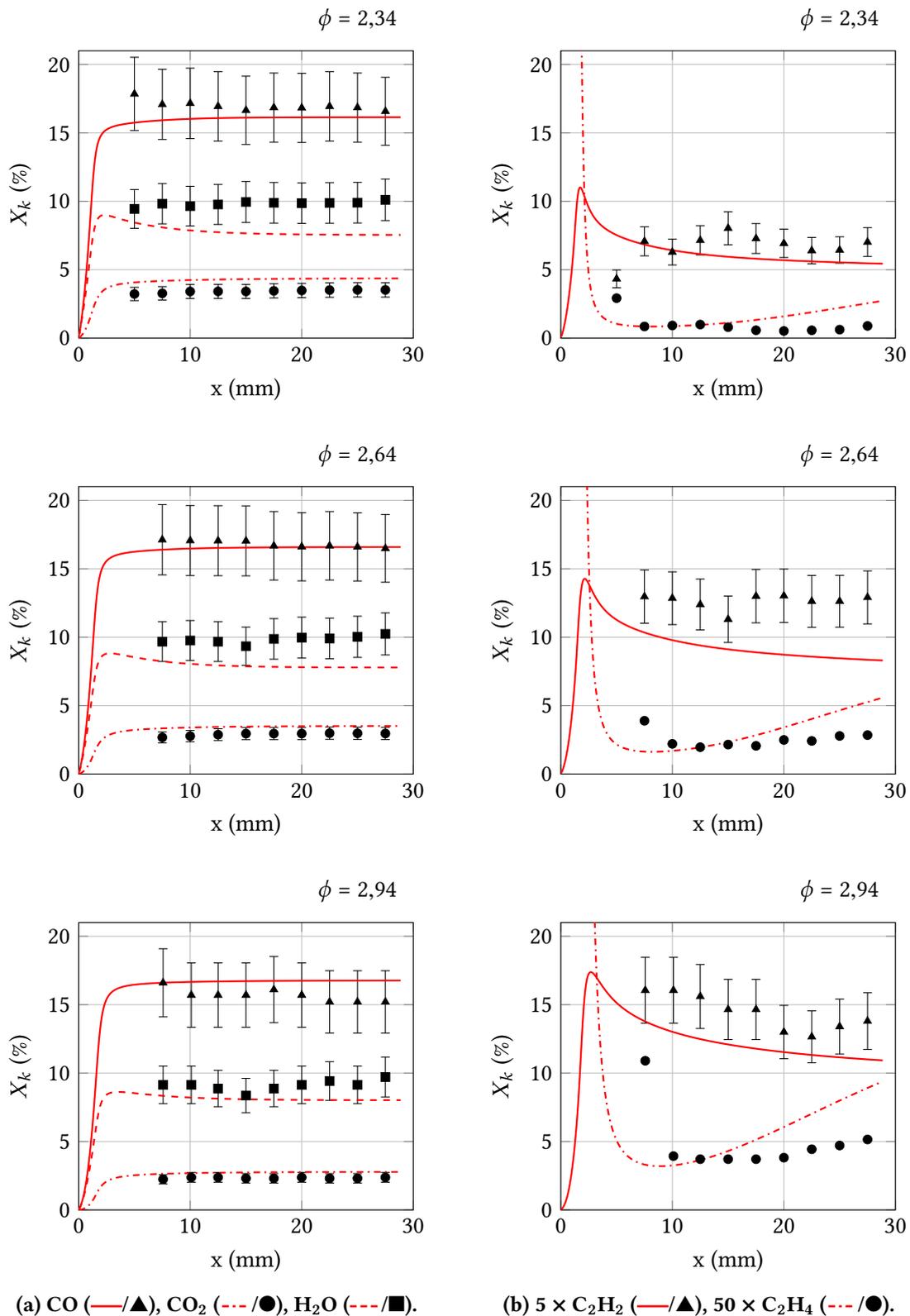


FIGURE 6.3 – Fractions molaires des espèces majoritaires en fonction de la distance au brûleur : CEDRE (lignes), Xu et al. (symboles).

des PAH sur les sphérules de grande taille.

3. Diminution de la température maximale dans la flamme :  $f_v$  et  $d_{10}$  augmentent avec les taux de

nucléation et de coalescence des particules, ce dernier étant proportionnel au nombre de sphères. La saturation du diamètre moyen due à la transition vers la pseudo-agrégation, déjà visible aux richesses 2,64 et 2,94, est alors perceptible.

Pour conclure, on rappelle que la simulation de la configuration en 1D, les conditions d'injection et les profils de température imposés induisent des biais par rapport aux travaux expérimentaux de Xu et al. Ces simplifications ont évidemment un impact non nul sur les résultats numériques. En particulier, la position de la flamme et celle d'apparition des premières particules de suie sont contraintes par le profil de température, si bien que la précocité de la nucléation à la richesse 2,94 pourrait n'être qu'artificielle. Une étude de sensibilité des solutions stationnaires obtenues aux paramètres de simulation dépasse toutefois les objectifs de ce travail de thèse. Il en est de même pour la simulation multi-physique de la configuration en 2D prenant en compte le poreux, le *coflow* de N<sub>2</sub>, la plaque de stabilisation, ainsi que les échanges thermiques entre la phase gazeuse, la phase dispersée et les objets solides.

## Bilan

Dans ce chapitre, on a appliqué avec succès la méthode couplée Euler-Lagrange développée dans ce travail de thèse à une flamme laminaire de prémélange  $C_2H_4/air$ , et ce à trois richesses. On a montré sa capacité à reproduire la croissance de la fraction volumique de suie et du diamètre moyen des particules avec la richesse et la distance au brûleur. On a mis en évidence, aux richesses les plus élevées, le bon accord entre simulations numériques et mesures expérimentales. En particulier, on a adapté le diamètre critique de transition de la coalescence à la pseudo-agrégation, afin d'assurer une prédiction correcte de l'évolution du diamètre moyen des particules, du moins pour la combustion  $C_2H_4/air$ .



## **Deuxième partie**

# **Évaluation du modèle de suie sur une configuration de complexité aéronautique**



---

## Chapitre 7

# Présentation de la configuration FIRST

---

L'objectif de ce chapitre est de présenter la configuration FIRST choisie pour la validation de la méthode couplée Euler-Lagrange développée et testée sur un cas académique dans la partie précédente. On présente successivement sa géométrie, les mesures expérimentales mises en œuvre et les simulations numériques déjà menées.

### Sommaire

---

7.1	Géométrie de la configuration . . . . .	94
7.2	Point de fonctionnement étudié . . . . .	95
7.3	Mesures expérimentales . . . . .	95
7.3.1	Caractérisation de la phase dispersée . . . . .	95
7.3.2	Caractérisation de la phase gazeuse . . . . .	96
7.3.3	Caractérisation des parois . . . . .	96
7.4	Simulations numériques . . . . .	96

---

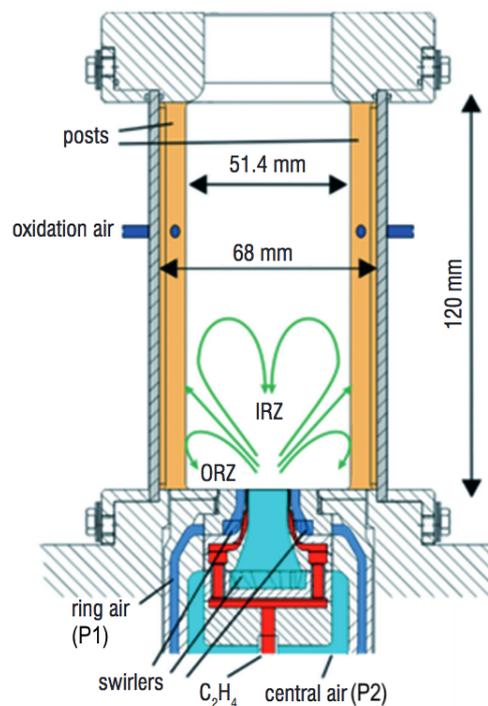
## 7.1 Géométrie de la configuration

La configuration FIRST est équipée d'une chambre de combustion  $C_2H_4$ /air à section carrée mise en œuvre par le DLR [41–44] dans le cadre du projet européen FIRST (*Fuel Injector Research for Sustainable Transport*), afin de générer une base de données pour la validation de modèles de suie dans une chambre représentative des technologies d'injection aéronautiques. Son injecteur principal est constitué de trois parties concentriques :

- une tuyère centrale, par laquelle l'air issu d'un premier plénum est injecté après avoir traversé un étage de huit vrilles radiales,
- une tuyère annulaire, par laquelle l'air issu d'un second plénum est injecté après avoir traversé un étage de douze vrilles radiales,
- un anneau de soixante canaux droits situés entre les deux entrées d'air, par lesquels l'éthylène gazeux est injecté. Dans une chambre de combustion aéronautique, les jets de kérosène liquide injectés à la place du  $C_2H_4$  seraient en réalité atomisés par cisaillement des écoulements d'air internes et externes ou par impact, puis vaporisés.

Quatre injecteurs secondaires d'air sont également disposés dans la partie supérieure de la chambre, au niveau des coins notés *posts* sur la figure 7.1. Ce système d'injection est représentatif de la technologie RQL (*Rich Quench Lean*) des brûleurs aéronautiques, dans lesquels une combustion riche est suivie d'une dilution rapide des gaz brûlés.

La topologie de l'écoulement, reportée sur la figure 7.1, est complexe, avec une large zone de recirculation interne au centre de la chambre et une zone de recirculation externe dans ses coins inférieurs. La flamme, à peu près conique, est stabilisée par ces recirculations, à partir de la zone de cisaillement entre les écoulements d'air swirlés et l'écoulement de  $C_2H_4$ .



**FIGURE 7.1 – Schéma de la configuration FIRST et topologie de l'écoulement.** IRZ = Inner Recirculation Zone = Zone de Recirculation Interne, ORZ = Outer Recirculation Zone = Zone de Recirculation Externe, P1 = Plenum 1, P2 = Plenum 2.

La chambre de combustion, présentée sur la figure 7.2, est refroidie à l'eau et à l'air. Elle dispose de hublots sur ses quatre faces latérales, essentiels à la mise en place de diagnostics optiques, et est placée

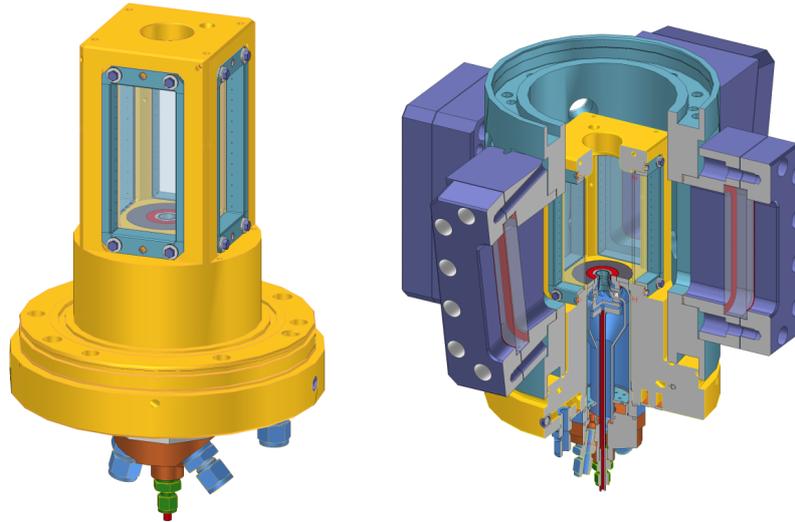


FIGURE 7.2 – Géométrie de la configuration FIRST sans (à gauche) et avec (à droite) l'enceinte pressurisée.

dans une enceinte pressurisée, dont le niveau de pression est adaptable à chaque point de fonctionnement étudié expérimentalement.

## 7.2 Point de fonctionnement étudié

		Débit ( $\text{g}\cdot\text{s}^{-1}$ )	Nombre de Reynolds (-)		
$\phi = 1,2$ $P = 32,2 \text{ kW}$	<b>Injection primaire</b>			$\phi = 0,86$ $P = 38,6 \text{ kW}$	
	Air (central)	3,020	$17,8 \times 10^4$		
	Air (anneau)	7,047	$16,5 \times 10^4$		
	$\text{C}_2\text{H}_4$	0,818	-		
	<b>Injection secondaire</b>				
Air	4,020	-			

TABLE 7.1 – Caractéristiques du point de fonctionnement de référence.  $P$  est la puissance théorique de combustion et  $\phi$  la richesse.

Parmi les seize points de fonctionnement disponibles [43], celui de référence à 3 bar avec injection secondaire d'air, recommandé par l'*International Sooting Flame Workshop*, est étudié dans ce travail de thèse. Ses caractéristiques sont reportées dans le tableau 7.1.

## 7.3 Mesures expérimentales

### 7.3.1 Caractérisation de la phase dispersée

La fraction volumique de suie dans le plan médian de la chambre de combustion a été déterminée par la méthode LII [43] (*Laser Induced Incandescence*) : les particules de suie sont excitées par une impulsion laser de longueur d'onde adéquate – généralement dans le proche infrarouge – et le rayonnement émis

lors de leur retour à l'équilibre thermique, fonction de la fraction volumique, est mesuré. Le dispositif a été calibré sur une flamme de diffusion laminaire pour obtenir des mesures quantitatives avec une incertitude inférieure à 30 %. Les champs mis à disposition sont moyennés sur 400 impulsions laser, avec une impulsion toutes les 400 ms (Impulsion de 9 ns et prise de vue simultanée sur 60 ns).

### 7.3.2 Caractérisation de la phase gazeuse

La température de l'écoulement dans le plan médian de la chambre de combustion a été déterminée en cinquante points par la méthode CARS [42] (*Coherent anti-Stokes Raman Scattering*) : trois impulsions laser, une à large bande et deux identiques à bande étroite, sont focalisées sur un point de la chambre et le rayonnement émis par le volume de contrôle excité, fonction de la température et de la composition (supposée être celle à l'équilibre thermodynamique), est mesuré. Les champs mis à disposition sont moyennés sur 1200 impulsions laser.

Les trois composantes de la vitesse dans le plan médian de la chambre de combustion ont été déterminées par la technique PIV [41] (*Particle Image Velocimetry*) : des particules sont injectées dans l'écoulement et leur déplacement entre deux impulsions lumineuses, i.e. deux prises de vue, est reconstruit par corrélation des paires d'image enregistrées. En raison de la forte luminosité des particules de suie sur ces images, les champs moyens mis à disposition ont toutefois nécessité deux techniques de traitement distinctes : la première, appelée *Field of View* (FoV), pour laquelle les vecteurs vitesse instantanés sont déduits des corrélations obtenues sur une zone restreinte de la chambre puis moyennés en temps, et la deuxième, appelée *Sum-of-Correlation* (SoC), pour laquelle les fonctions de corrélation instantanées sont moyennées en temps pour en déduire les vecteurs vitesse moyens. On notera que seule la première technique donne accès à la RMS de la vitesse.

Les concentrations de radical OH et de PAH de 100 à 200 g.mol<sup>-1</sup> dans le plan médian de la chambre de combustion ont été déterminées par la méthode PLIF [42, 44] (*Planar Laser Induced Fluorescence*) : les molécules de l'espèce étudiée sont excitées par une impulsion laser de longueur d'onde adéquate et le rayonnement émis, fonction de leur concentration, est mesuré. Les champs qualitatifs mis à disposition sont moyennés sur 200 impulsions laser.

### 7.3.3 Caractérisation des parois

La température des faces interne et externe des hublots a été déterminée par la méthode PT [77] (*Phosphor Thermometry*) : de la poudre de phosphore est appliquée sur la surface étudiée et le rayonnement émis, fonction de la température, est mesuré.

## 7.4 Simulations numériques

Le point de fonctionnement de référence de la configuration FIRST a été simulé par plusieurs équipes (distinguées par des sauts de ligne), dont les études sont présentées succinctement ci-après. Le but n'est pas ici d'entrer dans le détail des modèles utilisés, mais de proposer un aperçu de la diversité des méthodologies mises en œuvre et de permettre au lecteur d'y positionner l'approche développée dans cette thèse. Le lecteur est invité à consulter les références données pour plus de détails.

Eberle et al. [25, 45] ont tout d'abord utilisé une approche RANS instationnaire (URANS) avec le modèle  $k-\omega$  SST pour la turbulence. La chimie de la phase gazeuse est décrite par le même mécanisme à 43 espèces et 304 réactions que dans ce travail de thèse. Les PAH sont modélisés par une approche sectionnelle incluant 3 sections de molécules, et les suies par une méthode simplifiée à deux équations pour la fraction massique et le nombre de particules. L'interaction chimie-turbulence est modélisée par une approche à PDF (*Probability Density Function*) présumée, et le rayonnement des suies l'est sous l'hypothèse de milieu optiquement mince. Les champs de vitesse et de température obtenus sont en bon

accord avec les mesures expérimentales, les écarts résiduels étant associés à un manque de résolution de la zone de réaction induit par la description de la turbulence choisie. L'interaction chimie-turbulence ne joue ici qu'un rôle mineur sur l'évolution de la structure de flamme. La fraction volumique de suie est surestimée dans le domaine, d'un facteur 13 pour la valeur maximale, et la topologie de son champ est en partie erronée. Aucune particule n'est en effet présente sur l'axe, ce qui ne se manifeste que pour cette étude, et dans la zone de recirculation externe. Aussi, peu de particules survivent dans la partie aval de la chambre du fait de leur oxydation excessive.

Eberle et al. [26] ont ensuite utilisé une approche LES avec le modèle de sous-maille WALE (*Wall-Adapting Local Eddy-viscosity*). Avec les mêmes modèles que précédemment, excepté pour l'interaction chimie-turbulence qui n'est pas prise en compte, les champs de vitesse et de température obtenus sont comparables à ceux de l'approche URANS. La fraction volumique de suie est toujours surestimée, jusqu'à un facteur 17 pour la valeur maximale. La topologie de son champ, améliorée sur l'axe, reste en mauvais accord avec les mesures expérimentales dans la partie aval de la chambre et la zone de recirculation externe. Dans une étude récente de Grader et al. [49], les PAH sont modélisés par la même approche sectionnelle que dans ce travail de thèse et les suies par une méthode à 30 sections. L'interaction chimie-turbulence est modélisée par une approche à PDF présumée, et le rayonnement des espèces  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$  est ajouté à celui des suies sous l'hypothèse de milieu optiquement mince. Les champs de vitesse et de température obtenus sont toujours en bon accord avec les mesures expérimentales. La fraction volumique de suie est sous-estimée dans le domaine, néanmoins sa valeur maximale est correcte. La topologie du champ est semblable à celle obtenue par Eberle et al.

Franzelli et al. [33] ont également utilisé une approche LES avec le modèle de sous-maille WALE. La chimie de la phase gazeuse est décrite par une table FPI (*Flame Prolongation of ILDM*) ou un mécanisme réduit associé à une table pour la reconstruction des espèces non transportées (MT). Dans les deux cas, les suies sont modélisées par une méthode à deux équations de transport pour la fraction massique et le nombre de particules. L'interaction chimie-turbulence est modélisée par une approche DTFLES (*Dynamically Thickened Flame model for LES*). Le champ de température obtenu est en bon accord avec les mesures expérimentales, les écarts constatés étant reliés aux conditions adiabatiques imposées aux parois. La fraction volumique de suie est cependant surestimée, d'un facteur 18 à 180 pour la valeur maximale, et la topologie de son champ n'est pas toujours cohérente avec l'expérience dans la partie aval de la chambre, ainsi que dans la zone de recirculation externe.

Franzelli et al. [31] ont réalisé une simulation analogue avec une approche de tabulation de flamelettes RFPV (*Radiation Flamelet/Progress Variable*) prenant en compte les pertes thermiques par rayonnement sous l'hypothèse de milieu optiquement mince et l'interaction chimie-turbulence par une méthode à PDF présumée pour la combustion de la phase gazeuse. Les suies sont par ailleurs modélisées par une méthode à trois équations pour la fraction massique, le nombre et la surface totale des particules. La fraction volumique de suie est toujours surestimée, d'un facteur 3 pour la valeur maximale, et la topologie de son champ est en bon accord avec les mesures expérimentales, sauf dans la zone de recirculation externe.

Rodrigues [90] a utilisé une approche LES avec le modèle de sous-maille SIGMA. La combustion de la phase gazeuse est décrite par le modèle RFPV et les suies sont modélisées par une méthode sectionnelle à 25 sections. Les champs de vitesse et de température obtenus sont encore une fois en bon accord avec les mesures expérimentales. La fraction volumique de suie est sous-estimée dans le domaine, d'un facteur 2 à 4 avec ou sans prise en compte des pertes thermiques aux parois et par rayonnement, et, à l'exception de la recirculation externe, la topologie de son champ est raisonnablement bien prédite.

Felden et al. [28] ont utilisé une approche LES avec le modèle de sous-maille WALE. La chimie de la phase gazeuse est décrite par une table FPI ou un mécanisme réduit analytiquement (ARC) pour le point de fonctionnement de référence à 3 bar. Les suies sont modélisées par une méthode simplifiée à deux équations pour la fraction massique et le nombre de particules. L'interaction chimie-turbulence est modélisée par une approche DTFLES. Les champs de vitesse et de température obtenus sont en bon accord avec les mesures expérimentales. La fraction volumique de suie est surestimée dans le domaine

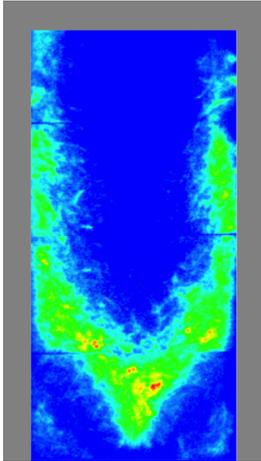
par l'approche FPI, d'un ordre de grandeur pour la valeur maximale, et sont du même ordre de grandeur que les mesures avec le mécanisme réduit analytiquement. La topologie de son champ est imparfaite, aucune particule n'est en effet visible dans la zone de recirculation externe et peu survivent dans la partie aval de la chambre du fait de leur oxydation excessive. Récemment, Gallen et al. [38] ont réalisé une simulation utilisant le même mécanisme réduit analytiquement avec une description lagrangienne des particules de suie, analogue à celle de ce travail de thèse mais restreinte à la transposition du modèle semi-empirique de Leung [67] à ce nouveau formalisme. Les résultats obtenus sont comparables à ceux de Felden et al.

Wick et al. [108] ont utilisé une approche LES avec le modèle de sous-maille de Vreman. La combustion de la phase gazeuse est décrite par le modèle RFPV. Les suies sont modélisées par la méthode des moments HMOM (*Hybrid Method of Moments*). Les champs de vitesse et de température obtenus sont en bon accord avec les mesures expérimentales, les écarts observés sur la température étant ici encore associés aux conditions adiabatiques imposées aux parois. La fraction volumique de suie, moyennée sur une période réduite par rapport aux autres simulations, est surestimée d'un facteur 200 pour la valeur maximale et la topologie de son champ n'est correcte que dans la partie inférieure de la chambre, en dehors de la zone de recirculation externe. En raison de leur oxydation rapide, aucune particule n'est par ailleurs présente dans la partie aval. Chong et al. [15], dans la lignée des travaux de Koo et al. [60], ont obtenu de meilleurs résultats avec une méthodologie similaire. Sans qu'une valeur exacte ne puisse être donnée, les écarts sur les pics de fraction volumique sont inférieurs à un ordre de grandeur.

Dupoirieux et al. [22] ont utilisé une approche LES avec le modèle de sous-maille de Smagorinsky. La chimie de la phase gazeuse est décrite par une table FPI, et les suies sont modélisées par une méthode simplifiée à deux équations pour la fraction massique et le nombre de particules. L'interaction chimie-turbulence est modélisée par une approche DTFLES avec PDF présumée. Les champs de vitesse et de température obtenus sont en bon accord avec l'expérience. La fraction volumique de suie est par ailleurs du même ordre de grandeur que les mesures. La topologie de son champ est cependant imparfaite, aucune particule n'est en effet visible dans la zone de recirculation externe ni, du fait de leur oxydation excessive, dans la partie aval de la chambre.

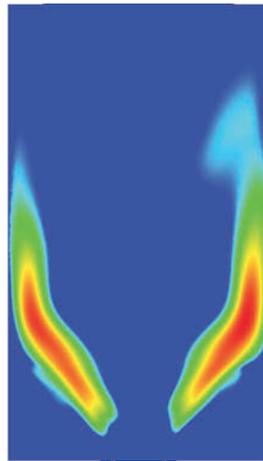
La figure 7.3 regroupe tous les champs de fraction volumique de suie dans le plan médian de la chambre de combustion obtenus dans les études mentionnées pour plus de clarté.

Pour conclure, la LES s'est largement imposée dans la littérature pour la simulation de la configuration FIRST. Toutefois, une grande sensibilité des résultats présentés à la modélisation de la combustion, des suies, ainsi que des pertes thermiques, peut être constatée. La prédiction correcte de l'oxydation des particules dans la partie aval de la chambre apparaît également comme un challenge sur le point de fonctionnement étudié, tout comme celle du niveau de fraction volumique de suie dans la zone de recirculation externe.



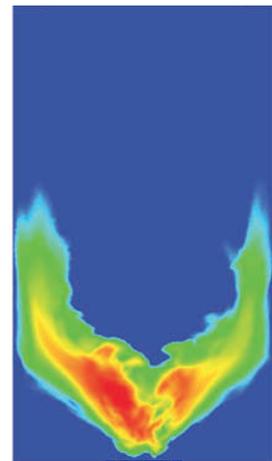
$f_{v,max} = 37$  ppb

(a) LII [43].



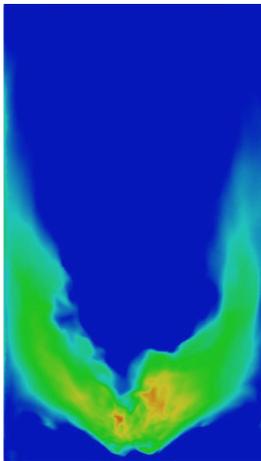
$f_{v,max} = 470$  ppb

(b) Eberle et al. [25].



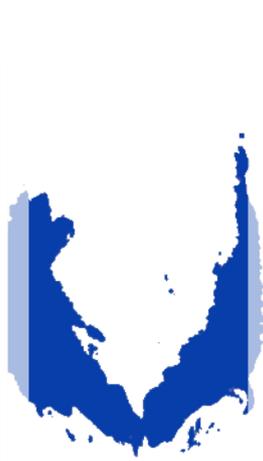
$f_{v,max} = 640$  ppb

(c) Eberle et al. [26].



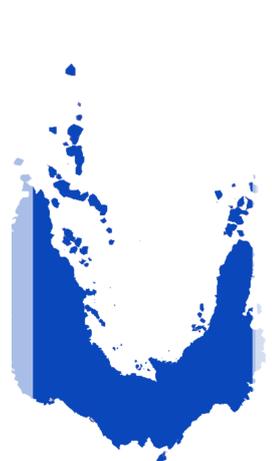
$f_{v,max} = 35$  ppb

(d) Grader et al [49].



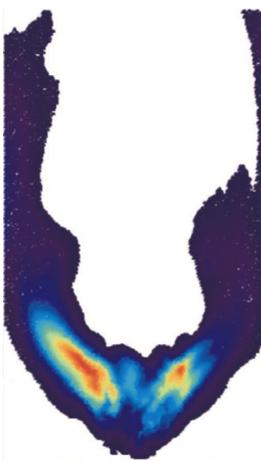
$f_{v,max} = 0,2$  ppb

(e) Franzelli et al. (FPI) [33].



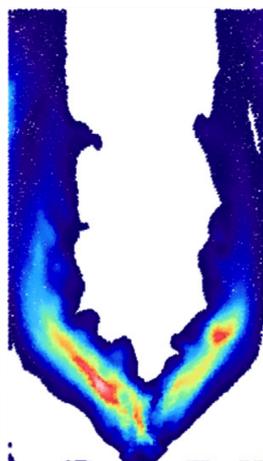
$f_{v,max} = 2$  ppb

(f) Franzelli et al. (MT) [33].



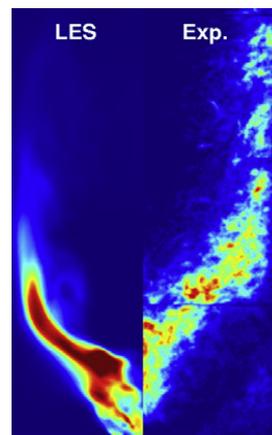
$f_{v,max} \sim 10$  ppb

(g) Franzelli et al. [31].

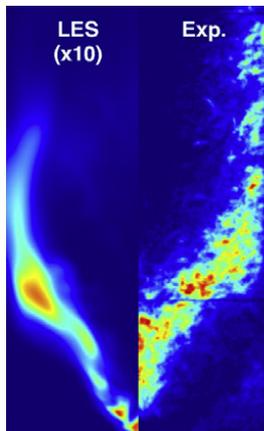


$f_{v,max} \sim 10$  ppb

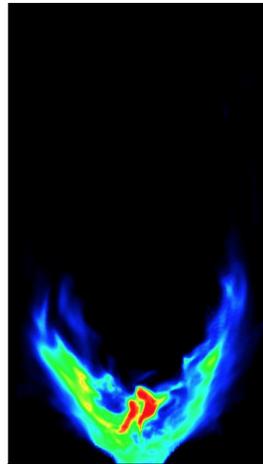
(h) Rodrigues [31].



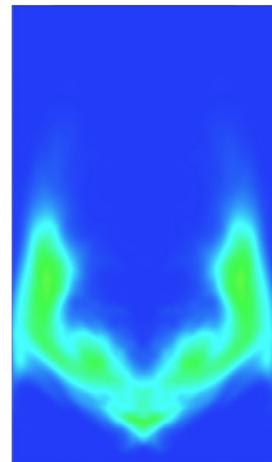
(i) Felden et al. (FPI) [28].



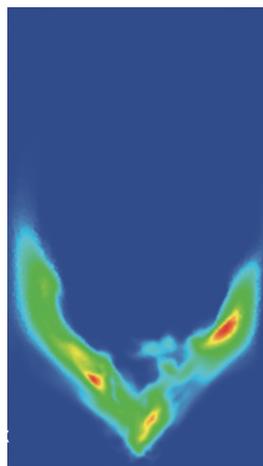
(j) Felden et al. (ARC) [28].



(k) Wick et al. [108].



(l) Chong et al. [15].



(m) Dupoirieux et al. [22].

**FIGURE 7.3 – Champs moyens de fraction volumique de suie issus de la littérature dans le plan médian de la chambre de combustion.** Les références sont rappelées pour chaque sous-figure, et la valeur maximale – si elle est disponible – est indiquée car les échelles de couleur diffèrent d’une équipe à l’autre. Tous les champs sont alignés sur le fond de chambre et sont à la même échelle.

## **Bilan**

Dans ce chapitre, on a présenté la configuration FIRST. On a particulièrement mis en évidence la diversité des méthodologies utilisées pour sa simulation dans la littérature, ainsi que la variabilité des résultats obtenus sur la prédiction des niveaux et de la topologie du champ de fraction volumique de suie dans le plan médian de la chambre de combustion. Par ailleurs, les champs rapportés donneront des éléments de comparaison au lecteur dans l'évaluation des capacités de la méthode couplée Euler-Lagrange.



---

## Chapitre 8

# Modélisation et méthodes numériques

---

L'objectif de ce chapitre est de décrire la modélisation et les méthodes numériques utilisées pour la simulation de la configuration FIRST introduite dans le chapitre précédent. On présente tout d'abord le domaine de calcul, son maillage et les conditions aux limites mises en œuvre. On indique ensuite les méthodes numériques choisies pour la discrétisation spatiale et temporelle, ainsi que le modèle de turbulence retenu. On propose également une procédure de réduction des fluctuations de pression dans la chambre, nécessaire pour éviter l'amplification d'une instabilité thermoacoustique non observée expérimentalement. On détaille enfin les motivations de l'application de l'approximation de l'état quasi-stationnaire à cette configuration, la méthode de sélection des espèces mises à l'équilibre et la validation du choix de celles-ci sur deux cas élémentaires, le réacteur à enthalpie et pression constantes et la flamme de prémélange librement propagative.

### Sommaire

---

8.1	Domaine de calcul, maillage et conditions aux limites . . . . .	104
8.1.1	Simplification de la géométrie . . . . .	104
8.1.2	Maillage . . . . .	104
8.1.3	Conditions aux limites . . . . .	104
8.2	Méthodes numériques et modèles hors combustion. . . . .	105
8.2.1	Stratégie de calcul . . . . .	105
8.2.2	Méthodes numériques . . . . .	105
8.2.3	Modèle de turbulence . . . . .	106
8.2.4	Procédure de réduction acoustique. . . . .	106
8.3	Modélisation de la combustion . . . . .	108
8.3.1	Motivations de l'AEQS . . . . .	108
8.3.2	Choix des espèces AEQS . . . . .	108
8.3.3	Validations élémentaires . . . . .	109

---

## 8.1 Domaine de calcul, maillage et conditions aux limites

### 8.1.1 Simplification de la géométrie

Afin de limiter la taille du maillage et le coût de calcul, les *pleni* utilisés pour tranquiliser l'air sont exclus du domaine. Les canaux d'admission d'éthylène et d'air pour l'injection secondaire, qui induiraient un nombre excessif de cellules de petite taille, ne sont également pas pris en compte dans leur totalité. Le domaine ne comprend ainsi que les étages de vrilles, la couronne d'injection de combustible formée par fusion des canaux d'admission, les injecteurs secondaires d'air, la chambre de combustion et l'atmosphère en aval.

### 8.1.2 Maillage

Le maillage, présenté sur les figures 8.1 et 8.2, est repris de l'étude menée à l'ONERA par Dupoirieux et al. [22]. Il est non-structuré, tétraédrique, et contient  $12,6 \times 10^6$  cellules,  $26,1 \times 10^6$  faces,  $2,4 \times 10^6$  sommets.

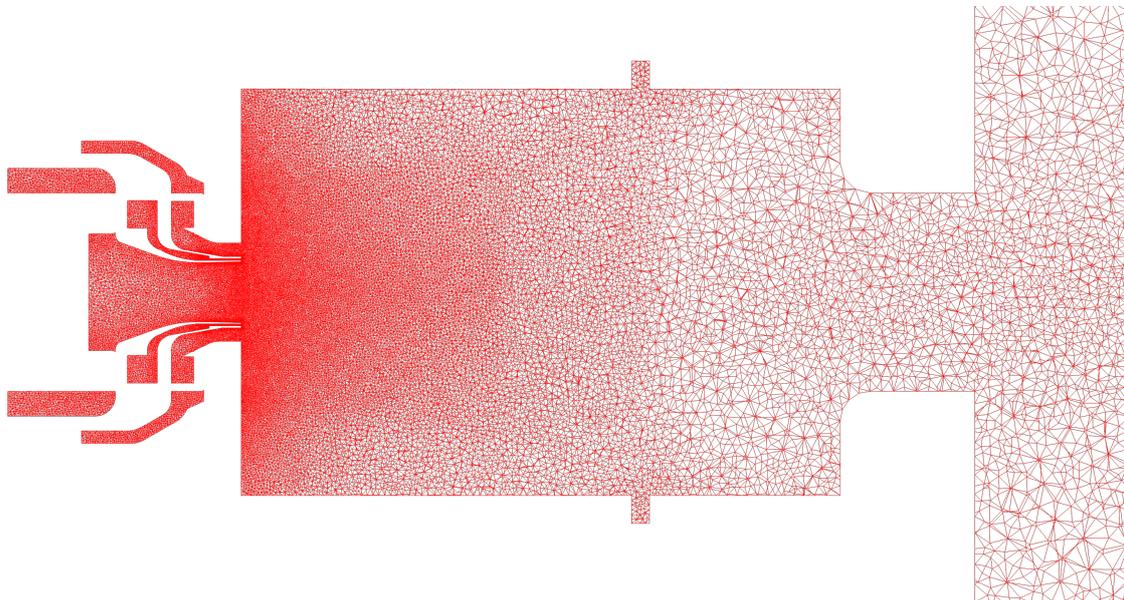


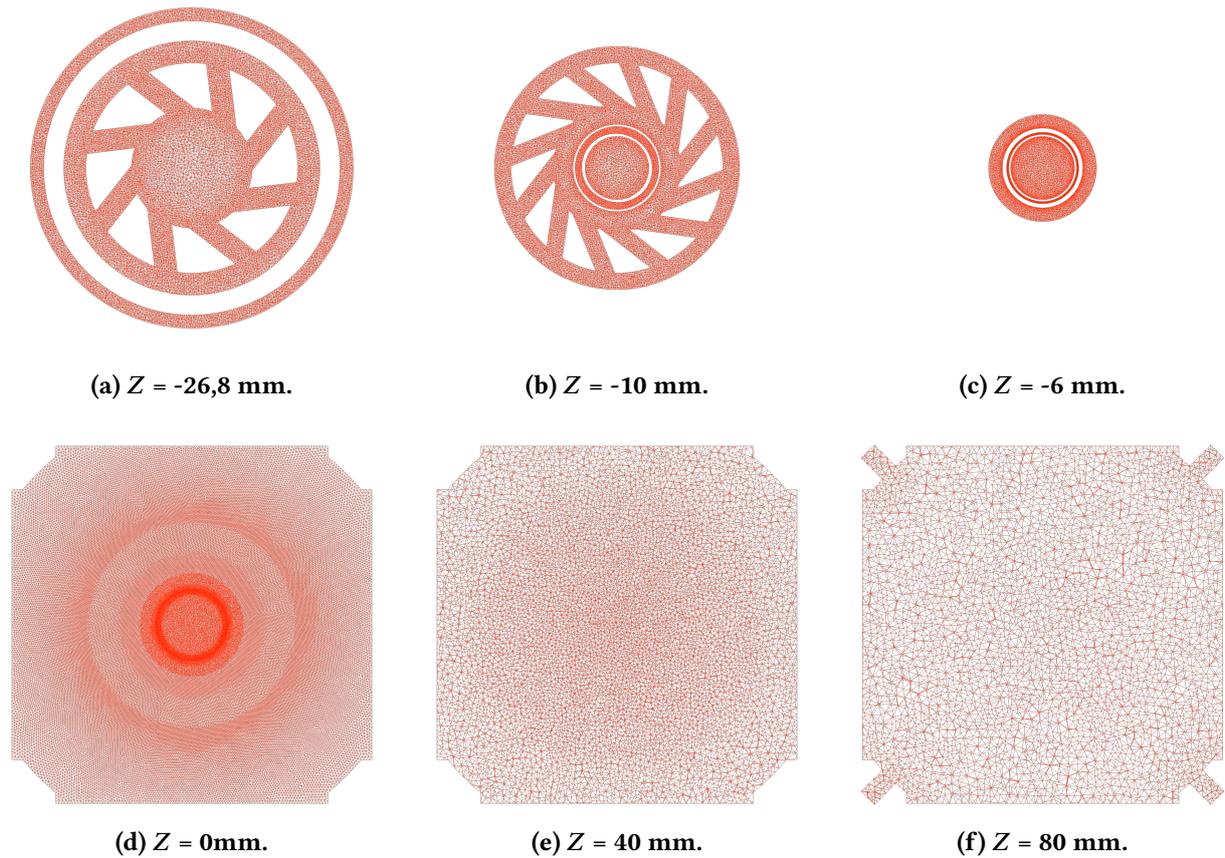
FIGURE 8.1 – Coupe du maillage dans le plan des injecteurs secondaires d'air.

Ce maillage est raffiné au niveau des injecteurs, ainsi que dans la moitié amont de la chambre de combustion où se stabilise la flamme. Il est fortement déaffiné dans l'atmosphère afin de dissiper les éventuelles ondes acoustiques. Le diamètre caractéristique des cellules – de volume  $V$  – à la sortie de l'injecteur d'éthylène est donné à titre indicatif par :

$$d = \sqrt[3]{V} = 65 \mu\text{m}. \quad (8.1)$$

### 8.1.3 Conditions aux limites

Dans le solveur CHARME, on utilise des entrées subsoniques à débit imposé avec une température de 300 K, pour lesquelles les débits d'air et d'éthylène sont donnés dans le tableau 7.1. L'air injecté est ici supposé être composé de 79 % d'azote et 21 % d'oxygène en volume. Une sortie subsonique à la pression de 3 bar associée à des conditions acoustiques de non-réflexion est imposée en aval. La température des parois de la chambre de combustion, initialement estimée entre 600 et 900 K [43], est fixée à 800 K en l'absence d'indications supplémentaires au lancement du calcul. Nau et al. [77] ont toutefois récemment montré que ses niveaux pouvaient atteindre 1600 K dans certaines sections. Les parois des injecteurs



**FIGURE 8.2 – Coupes transversales du maillage à 6 hauteurs  $Z$ .** L'origine du repère est fixé au centre de l'injection centrale d'air, au niveau du fond de la chambre de combustion.

sont considérées comme adiabatiques. Toutes les parois sont adhérentes.

Dans le solveur SPARTE utilisé pour le suivi des particules de suie, toutes les limites du domaine de calcul sont des frontières libres, i.e. laissant sortir les particules. Cela n'a toutefois pas de conséquence sur les résultats car ces dernières se comportent comme des traceurs immergés dans la phase gazeuse, ce qui autorise à s'affranchir de la modélisation de leur dépôt ou de leur rebond sur les parois <sup>1</sup>.

## 8.2 Méthodes numériques et modèles hors combustion

### 8.2.1 Stratégie de calcul

Le calcul réalisé a été divisé en trois phases. Une reprise a d'abord été effectuée à partir des résultats de l'étude menée par Dupoirieux et al., avec le mécanisme de nucléation décrit au chapitre 2 et sans prise en compte de la phase dispersée. L'approximation de l'état quasi-stationnaire a ensuite été appliquée à ce mécanisme, comme expliqué dans la suite de ce chapitre. La phase dispersée a finalement été rajoutée.

### 8.2.2 Méthodes numériques

Dans le solveur CHARME, les flux hyperboliques sont calculés par un schéma HLLC [103] avec correction bas Mach [95], et un schéma MUSCL [50] d'ordre 2 est utilisé pour la discrétisation spatiale.

1. La vitesse normale de la phase gazeuse est nulle aux parois, la perte de particules à travers celles-ci – assimilable à leur dépôt – est donc négligeable.

L'intégration temporelle est réalisée par la méthode implicite de Gear d'ordre 2, associée au splitting et à la limitation des sources en provenance de la phase dispersée, ainsi qu'au schéma de couplage introduits au chapitre 3. On notera que la limitation des sources ne dégrade pas la précision de la méthode de discrétisation spatiale, elle garantit seulement la cohérence entre les masses d'espèces gazeuses consommables et effectivement consommées lors de l'évolution des particules de suie.

Dans le solveur SPARTE, le nombre maximal de particules numériques par cellule est pris égal à 64, ce qui est jugé suffisant pour la prédiction des deux premiers moments de la PSD, par comparaison des volumes de contrôle du maillage courant et de celui utilisé au chapitre 5. L'algorithme de réduction est quant à lui appliqué tous les 50 cycles. On notera que le choix de ces deux paramètres a aussi été imposé par le coût de calcul et la consommation mémoire, en particulier pour l'écriture des fichiers de sauvegarde et reprise de la simulation. À titre indicatif, le nombre de particules numériques dans le domaine s'établit autour de  $4 \times 10^7$ . Aucune particule n'est toutefois présente en amont du fond de chambre et les particules dépassant sa sortie sont supprimées plutôt que d'être transportées dans l'atmosphère.

Le pas de temps est fixé à  $0,5 \mu\text{s}$  dans les deux solveurs – couplés à chaque itération – et les champs moyens exploités dans la suite de ce travail sont obtenus sur un temps physique de 40 ms après le transitoire, ce qui correspond à quatre traversées de la chambre de combustion. Ces 40 ms de simulation, réalisées sur le calculateur scalaire Sator (ONERA), ont requis 0,8 millions d'heures CPU sur 70 processeurs Intel Xeon E5-2680v4 à 14 cœurs et cadencés à 2,4 GHz, soit 34 jours de calcul. Avec le découpage du maillage en sous-domaines identiques, le coût du solveur SPARTE a représenté en moyenne 25 % du coût total. Le temps de restitution pourrait toutefois être réduit en équilibrant la charge entre les sous-domaines avec une contrainte supplémentaire sur la répartition des particules numériques. Cette fonctionnalité, implémentée en début de thèse, a été testée avec succès sur le cas simple d'un canal 3D de 50 millions de cellules, dans lequel 4,5 millions de particules numériques sont advectées [10], mais son efficacité sur la configuration FIRST n'a pas pu être éprouvée dans ces travaux par manque de temps. On notera aussi que le pas de temps n'a pu être augmenté en raison de difficultés numériques.

### 8.2.3 Modèle de turbulence

L'influence des structures turbulentes à l'échelle de sous-maille sur les structures résolues est décrite par le modèle de Smagorinsky, avec une constante de sous-maille de 0,1. Les nombres de Schmidt et de Prandtl turbulents pour les flux de diffusion des espèces et de la chaleur sont fixés à 0,9. Le nombre de Schmidt pour les flux de diffusion moléculaire des espèces est, lui, choisi unitaire. On rappelle par ailleurs que la description des propriétés physiques du mélange dans CEDRE et des flux de diffusion laminaire, supposés avoir une contribution minoritaire dans les flux totaux, est détaillée au chapitre 1.

Une loi de paroi analogue au modèle de longueur de mélange de Prandtl [79] est utilisée pour décrire le comportement de la couche limite, non résolue par le maillage.

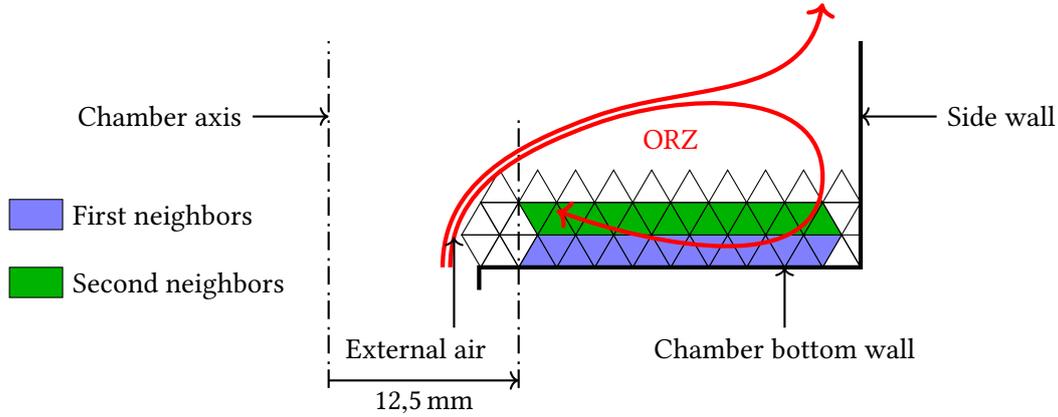
L'interaction chimie-turbulence n'est pas modélisée dans ce travail de thèse, les termes source des espèces transportées sont donc déterminés en fonction de la température et des concentrations aux échelles résolues, comme dans l'étude LES menée par Eberle et al. [26]. L'extension du modèle de flamme épaissie DTFLES, particulièrement adaptée à la tabulation FPI dans le solveur CHARME, n'a en effet pas pu être abordée. On notera que l'épaississement artificiel de la flamme par le maillage et le décentrement des schémas de discrétisation spatiale utilisés assure la stabilité de la simulation en l'absence de DTFLES, comme rapporté par Dorey [20], ce qui ne serait pas nécessairement le cas avec des schémas centrés.

### 8.2.4 Procédure de réduction acoustique

Un inconvénient du point de fonctionnement choisi est l'instabilité, d'origine numérique<sup>2</sup>, de la flamme [40]. Le déraffinement du maillage dans l'atmosphère en aval et les conditions de non-réflexion

2. Aucune instabilité n'est constatée expérimentalement [Communication privée, Klaus-Peter Geigle, DLR].

en sortie sont ainsi insuffisants à l'évacuation de l'énergie acoustique. La solution mise en place consiste à relaxer la pression vers une pression consigne en proche paroi.



**FIGURE 8.3 – Définition des premier et deuxième voisinages par sommet du fond de chambre.**  
La taille des cellules est volontairement exagérée.

Afin de ne pas perturber l'écoulement loin de la paroi, on n'applique la relaxation de la pression qu'aux cellules appartenant aux premier et deuxième voisinages par sommet du fond de chambre. Les cellules à moins de 12,5 mm de son centre ou partageant un sommet avec une autre limite en sont néanmoins exclues, comme illustré sur la figure 8.3. En fin de cycle CHARME, les cellules dont la pression doit être relaxée sont identifiées par les équations (8.2) :

$$|p - \bar{p}| \geq \epsilon \cdot \bar{p}, \quad (8.2)$$

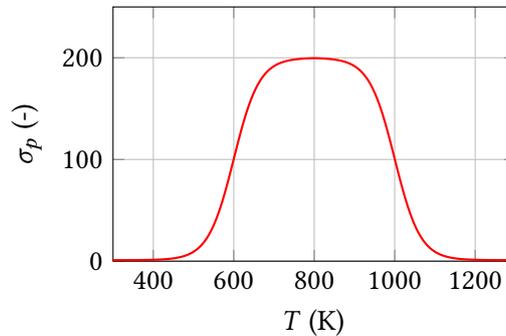
et (8.3) :

$$|T - \bar{T}| < 0,5 \cdot \bar{T}, \quad (8.3)$$

avec  $\epsilon \ll 1$ ,  $\bar{p} = 3$  bar, la pression consigne, identique à celle dans la chambre de combustion, et  $\bar{T} = 800$  K la température imposée à la paroi. Le coefficient de relaxation en pression, tracé sur la figure 8.4, y est calculé par l'équation (8.4) :

$$\sigma_p(T) = \frac{\bar{\sigma}_p - 1}{2} \tanh \left[ \pi - 4\pi \frac{|T - \bar{T}|}{\bar{T}} \right] + \frac{\bar{\sigma}_p + 1}{2}, \quad (8.4)$$

où  $\bar{\sigma}_p = 200$  (par défaut). Par construction, il est maximal si la température est proche de celle à la paroi.



**FIGURE 8.4 – Évolution du coefficient de relaxation en pression en fonction de la température.**

La pression est actualisée selon l'équation (8.5) :

$$p = \frac{1}{\sigma_p} [p + (\sigma_p - 1) \bar{p}]. \quad (8.5)$$

La température est déterminée à  $\rho e$  constant avec une composition figée, en supposant l'énergie cinétique négligeable devant l'énergie interne  $e$ , et les quantités transportées sont corrigées en conséquence.

L'amplitude maximale des fluctuations de pression au niveau du fond de chambre et en sortie est divisée par deux avec cette méthode, sans perturber l'écoulement dans la zone de recirculation externe outre mesure. Pour aller plus loin, on notera que la prise en compte du deuxième voisinage augmente l'efficacité de l'approche utilisée. Des tests ont par ailleurs montré qu'il était possible de relaxer indépendamment la pression et la température au détriment de la conservation de la masse ou de l'énergie. La conservation de la masse volumique seule au lieu du produit  $\rho e$  a quant à elle mené à des difficultés numériques. Enfin, une décroissance moins rapide du coefficient de relaxation ou une extension du domaine de température où la méthode s'active peut renforcer sa capacité à réduire le niveau des fluctuations de pression avec une empreinte cependant plus marquée sur l'écoulement.

Pour prévenir la remontée et le maintien de la flamme dans l'injecteur central d'air, malgré la réduction des fluctuations de pression, les termes sources des espèces sont neutralisés jusqu'à 2 mm en amont du fond de chambre, ce qui est cohérent avec les mesures de température.

## 8.3 Modélisation de la combustion

### 8.3.1 Motivations de l'AEQS

Pour cette simulation, le mécanisme squelettique introduit au chapitre 2 comprend 42 espèces, auxquelles s'ajoutent les six espèces fictives que constituent les sections de PAH et leurs radicaux. Le coût de calcul, croissant avec le nombre de quantités transportées et potentiellement prohibitif, doit par conséquent être limité. On choisit pour cela d'appliquer l'AEQS, implémentée dans le solveur CHARME pour ce travail de thèse.

Il existe dans la littérature des codes automatisés d'identification des espèces AEQS, par exemple l'outil YARC développé par Pepiot [81] et basé sur l'approche *Level Of Importance* de Løvas [69]. Dans ce travail, on suit toutefois une démarche simplifiée, non automatisée, mais adaptée aux problématiques rencontrées. Plus qu'un code de réduction générique, on cherche à montrer la validité du couplage entre un mécanisme réduit analytiquement, un modèle sectionnel de PAH et la description lagrangienne des particules de suie sur une configuration de complexité aéronautique.

### 8.3.2 Choix des espèces AEQS

Dans l'approche de Løvas, une espèce AEQS est identifiée par son niveau d'importance, produit de sa durée de vie, de sa concentration et de la sensibilité d'une variable d'intérêt  $Q$ , comme la vitesse de flamme, à sa concentration. Aux espèces à durée de vie courte usuellement mises à l'équilibre peuvent ainsi être adjointes les espèces à durée de vie plus longue, inutiles au calcul de  $Q$ , réduisant davantage le nombre d'espèces transportées. Par souci de simplification, l'approche mise en place est néanmoins limitée à l'analyse de la durée de vie des espèces, facile à évaluer.

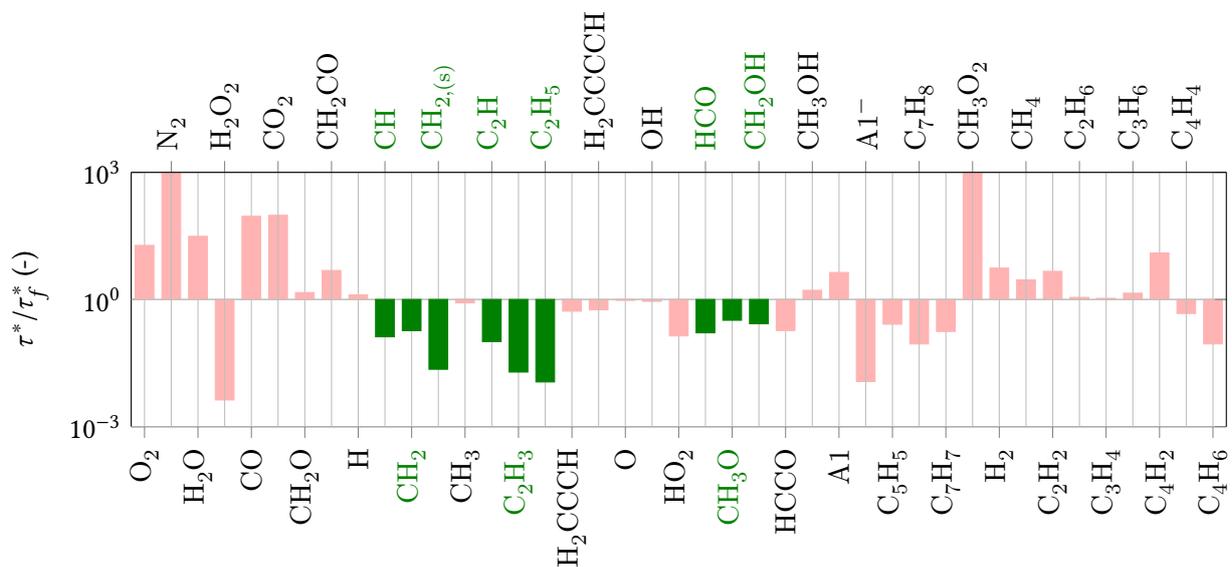
Dans ce travail, la durée de vie  $\tau_k$  d'une espèce  $X_k$  est définie comme l'inverse du terme diagonal de la matrice jacobienne des taux de réaction :

$$\tau_k = \left| \frac{\partial \dot{\omega}_k}{\partial [X_k]} \right|^{-1}. \quad (8.6)$$

Elle est donc automatiquement calculée par le solveur CHARME avec un opérateur d'intégration temporelle implicite et facilement accessible. En particulier, l'extraction et l'analyse de ses valeurs à l'allumage  $\tau_k^*$  pour l'ensemble des espèces du mécanisme squelettique sur une série de réacteur HP, à enthalpie et pression constantes, a permis d'établir la liste de celles susceptibles d'être mises à l'équilibre, avec les contraintes suivantes :

- la contribution de l'espèce à la masse volumique et à l'enthalpie du mélange doit être minoritaire,
- la mise à l'équilibre de l'espèce ne doit pas produire de non-linéarité et impliquer la mise à zéro d'un taux d'avancement dans le mécanisme de nucléation,
- si possible, l'espèce ne doit pas être incluse dans le mécanisme de nucléation, ce qui peut être très restrictif et n'est donc appliqué qu'aux hydrocarbures lourds.

La liste retenue, ajustée et validée au cours d'un processus itératif, est constituée de 9 espèces : CH, CH<sub>2</sub>, CH<sub>2,(s)</sub><sup>3</sup>, C<sub>2</sub>H, C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, HCO, CH<sub>3</sub>O, CH<sub>2</sub>OH, similaires à celles identifiées par Lu et Law [71].



**FIGURE 8.5 – Durée de vie  $\tau^*$  des espèces du mécanisme squelettique sur un cas de réacteur HP à la stœchiométrie pour une pression de 3 bar et une température initiale de 1400 K.** Les durées de vie sont normalisées par celle du combustible :  $\tau_f^* = 79$  ns. Les espèces AEQS sont en vert.

À titre d'exemple, la durée de vie des espèces est tracée sur la figure 8.5 pour un cas de réacteur HP.

### 8.3.3 Validations élémentaires

Afin de valider le choix des espèces AEQS, deux cas élémentaires sont mis en œuvre : le réacteur HP, également utilisé pour l'identification de ces espèces, et la flamme de prémélange stationnaire librement propagative. La pression est fixée à 3 bar conformément au point de fonctionnement retenu pour le cas FIRST, et six richesses entre 0,7 et 2,8 sont considérées, ce qui correspond à la gamme rencontrée dans la simulation.

Pour le réacteur HP, le modèle sectionnel et la phase dispersée sont tous deux désactivés. Le mécanisme de nucléation est activé pour la flamme, sans que la phase dispersée puisse toutefois être prise en compte. Le raffinement du maillage et le petit pas de temps impliquent en effet un surcoût considérable aux richesses les plus élevées. Le terme source de nucléation  $\omega_0$ , ainsi que la concentration des espèces

3. CH<sub>2</sub> et CH<sub>2,(s)</sub> sont deux variantes de carbène de structures électroniques différentes. L'indice (s) correspond à *Singlet*.

Réacteur HP	Flamme de prémélange
$\tau_a, T_b$	$s_L, T_g, C_2H_4, C_2H_2, OH, O_2$ $PAH_0, PAH_1, PAH_2, PAH_0^*, PAH_1^*, PAH_2^*, \dot{\omega}_0$

TABLE 8.1 – Cibles de validation de l'AEQS par cas élémentaire.  $T_b$  = température des gaz brûlés.

de croissance et d'oxydation des particules de suie sont en contrepartie ajoutés à la liste des variables cibles de validation, présentée dans le tableau 8.1.

### Réacteur HP

Le réacteur HP est modélisé par une unique cellule carrée de  $10 \mu\text{m}$  de côté, selon la méthode présentée au chapitre 2. La pression est fixée à 3 bar et la température initiale à 1400 K. L'intégration temporelle est réalisée par la méthode implicite de Gear d'ordre 2, avec un pas de temps égal à  $0,02 \mu\text{s}$  pour un temps physique de simulation de 0,6 ms.

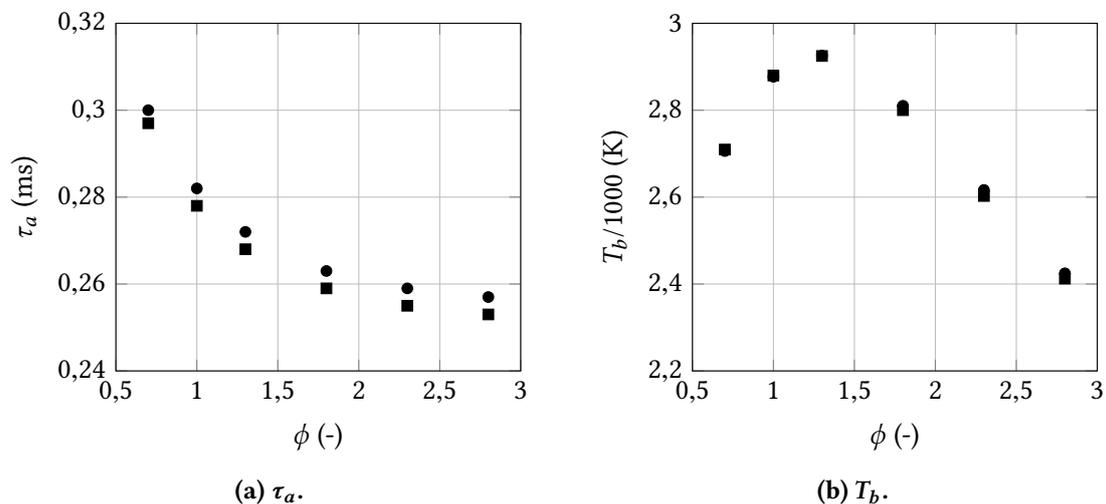


FIGURE 8.6 – Délai d'auto-inflammation et température des gaz brûlés dans un réacteur HP en fonction de la richesse sans (●) et avec (■) AEQS pour une pression de 3 bar et une température initiale de 1400 K.

Le délai d'auto-inflammation et la température des gaz brûlés sont présentés sur la figure 8.6 en fonction de la richesse, sans et avec AEQS. Les erreurs maximale et moyenne sont respectivement égales à 1,6 % et 1,4 % sur la première variable, à 0,53 % et 0,28 % sur la seconde, ce qui est très satisfaisant.

### Flamme de prémélange

La flamme de prémélange est simulée sur un domaine 1D de 50 mm de longueur, selon la méthode présentée au chapitre 2. Le maillage est structuré, constitué de 1240 cellules et raffiné au niveau du front de flamme, où la taille minimale des cellules est de  $2 \mu\text{m}$ . Les gaz frais sont injectés à la température de  $400 \text{ K}$ <sup>4</sup>, à la vitesse de flamme laminaire calculée sous *Cantera*. La pression en sortie est fixée à 3 bar. Les nombres de Schmidt et de Prandtl sont par ailleurs choisis unitaires. Un schéma MUSCL d'ordre 2 est utilisé pour la discrétisation spatiale et les flux hyperboliques sont déterminés par un schéma HLLC avec correction bas Mach. L'intégration temporelle est réalisée par la méthode implicite de Gear d'ordre

4. La température des gaz frais a été augmentée par rapport à la configuration FIRST en raison de défauts de robustesse rencontrés à certaines richesses.

2. Le pas de temps est de  $0,02 \mu s$  et le temps physique de simulation de 6 ms, extensible au besoin jusqu'à convergence des grandeurs d'intérêt.

L'évolution de la vitesse de flamme laminaire est présentée sur la figure 8.7 en fonction de la richesse, sans et avec AEQS. Les erreurs maximale et moyenne, respectivement égales à 1,7 % et 1,1 %, sont très acceptables.

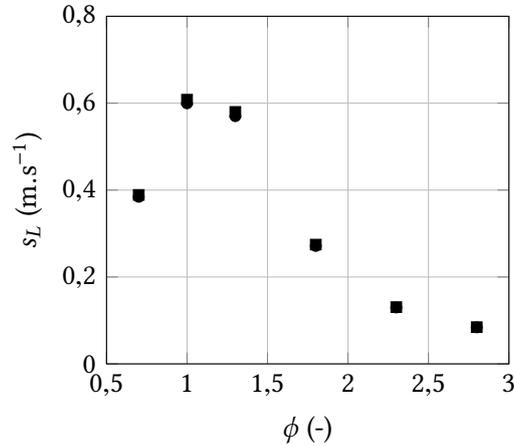
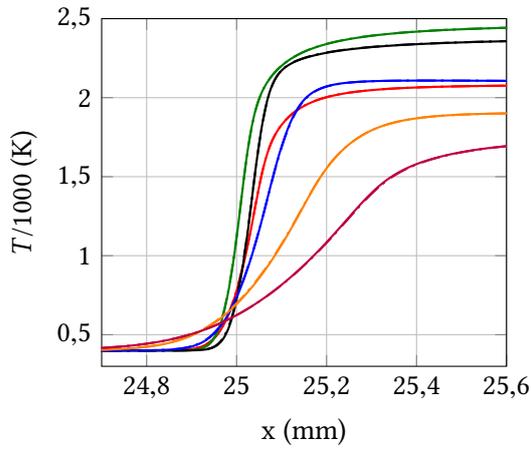


FIGURE 8.7 – Vitesse de flamme laminaire en fonction de la richesse sans (●) et avec (■) AEQS.

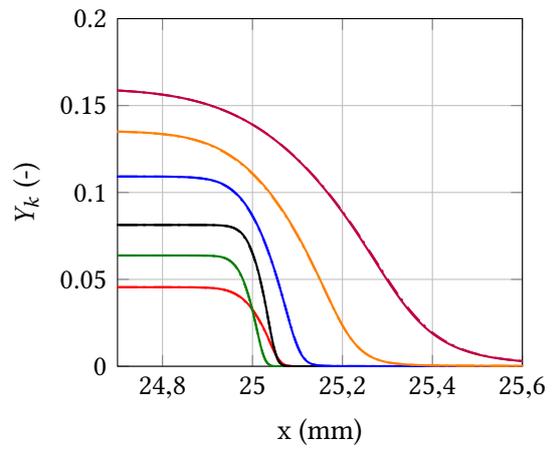
$\phi$	T	$C_2H_4$	$C_2H_2$	OH	$O_2$	$PAH_0$	$PAH_0^*$	$PAH_1$	$PAH_1^*$	$PAH_2$	$PAH_2^*$	$\dot{\omega}_0$
0,7	-	-	0,14	0,22	-	-	-	-	-	-	-	-
1,0	-	-	1,5	0,30	-	-	-	-	-	-	-	-
1,3	-	-	2,8	1,1	-	-	-	-	-	-	-	-
1,8	-	-	1,4	0,94	-	7,5	2,1	7,5	6,8	9,3	10	12
2,3	-	-	0,23	0,36	-	5,8	2,4	5,3	5,7	6,2	7,9	11
2,8	-	-	0,022	0,53	-	2,4	2,1	1,9	3,6	2,2	4,7	7,2

TABLE 8.2 – Erreur sur les pics (si existants) des variables d'intérêt dans une flamme de pré-mélange en fonction de la richesse. (Unité = %).

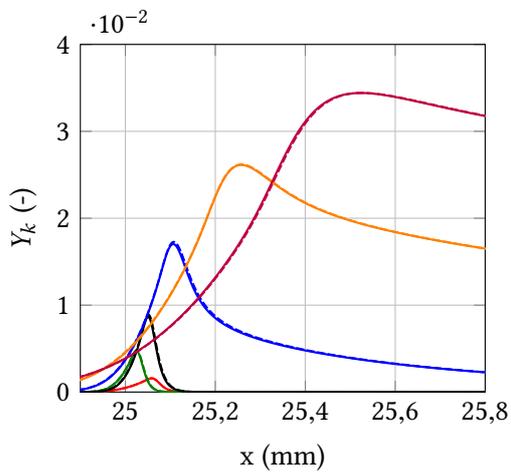
La figure 8.8 et le tableau 8.2 synthétisent les profils des variables d'intérêt autour du front de flamme sans et avec AEQS, ainsi que l'erreur sur leurs pics. Un bon accord est constaté à la fois sur la forme et la magnitude des courbes présentées, ce qui conforte le choix des espèces AEQS pour la simulation de la configuration FIRST, tout en gardant à l'esprit que la validation a été réalisée sur des cas élémentaires. On notera en particulier que l'erreur sur les fractions massiques des PAH et de leurs radicaux, de même que celle sur le terme source de nucléation, tend à se résorber aux richesses les plus élevées, auxquelles la formation des hydrocarbures lourds et des particules de suie est favorisée. Au contraire, en-deçà de  $\phi = 1,8$ , les grandeurs relatives au modèle sectionnel ne sont pas fournies car non pertinentes à de tels niveaux.



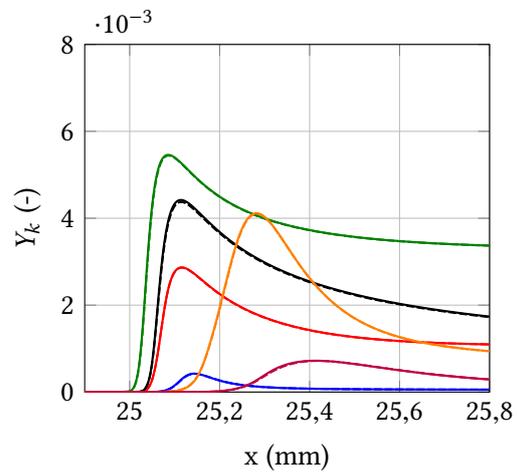
(a) Température.



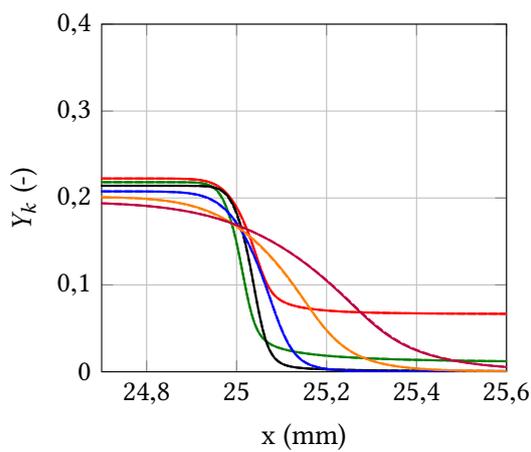
(b) C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>.



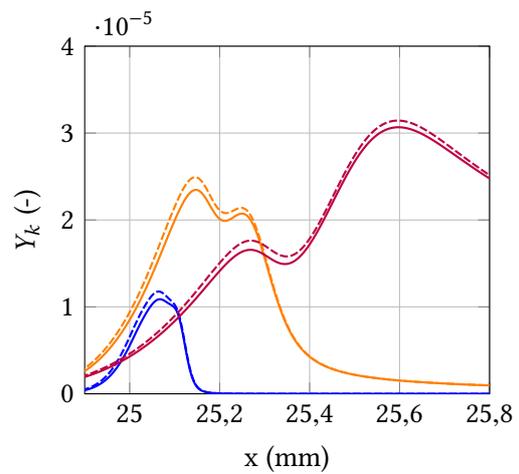
(c) C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>.



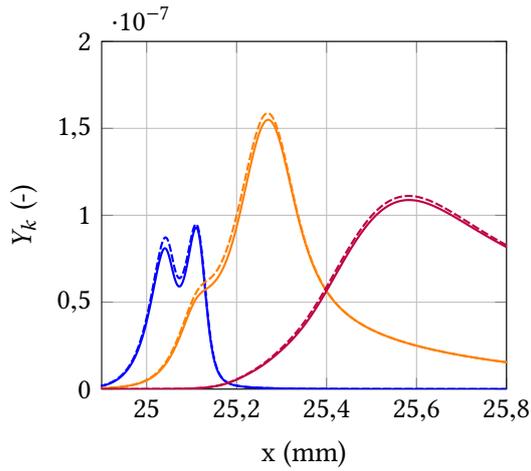
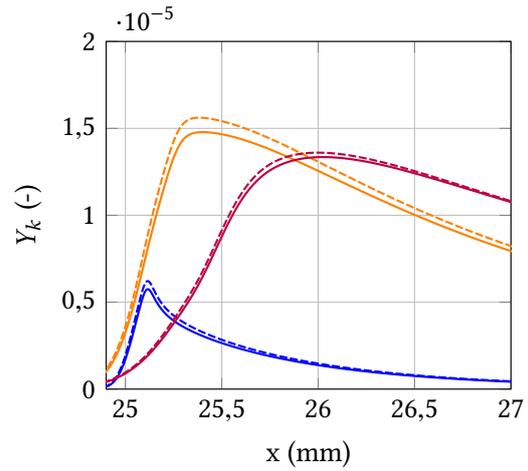
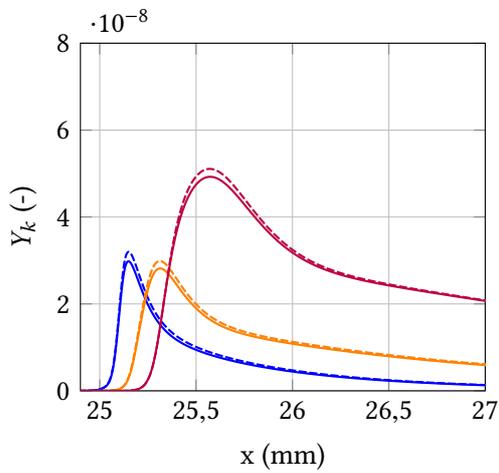
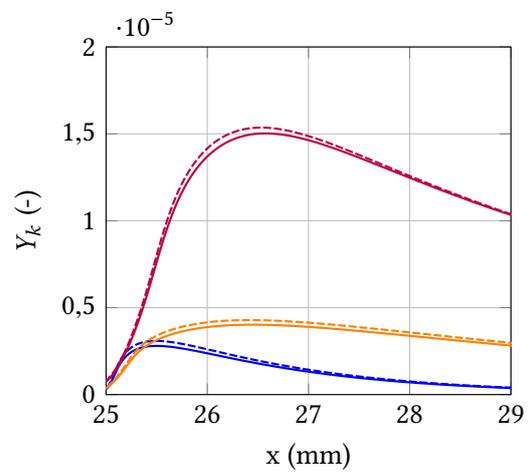
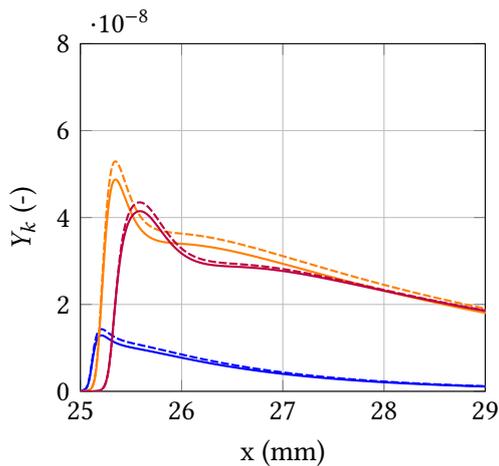
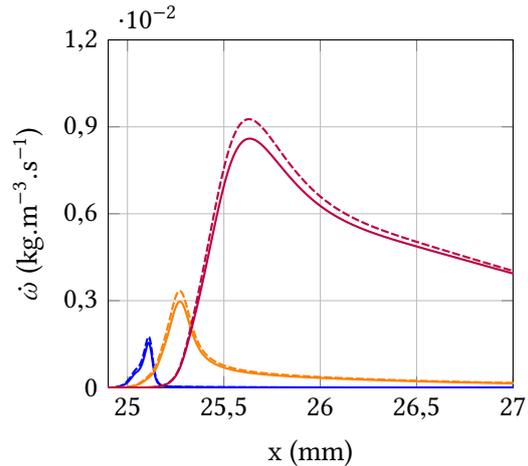
(d) OH. ( $\times 100$  si  $\phi \geq 2,3$ ).



(e) O<sub>2</sub>.



(f) PAH<sub>0</sub>. ( $\times 100$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 10$  si  $\phi = 2,1$ ).

(g)  $\text{PAH}_0^*$ . ( $\times 100$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 10$  si  $\phi = 2,1$ ).(h)  $\text{PAH}_1$ . ( $\times 10^4$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 100$  si  $\phi = 2,1$ ).(i)  $\text{PAH}_1^*$ . ( $\times 10^3$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 10$  si  $\phi = 2,1$ ).(j)  $\text{PAH}_2$ . ( $\times 10^5$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 100$  si  $\phi = 2,1$ ).(k)  $\text{PAH}_2^*$ . ( $\times 10^4$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 100$  si  $\phi = 2,1$ ).(l)  $\dot{\omega}_0$ . ( $\times 10^7$  si  $\phi = 1,8$  /  $\times 10^3$  si  $\phi = 2,1$ ).

**FIGURE 8.8 – Profils des variables d'intérêt dans une flamme de prémélange sans (tirets) et avec (lignes) AEQS en fonction de la richesse : 0,7 (—), 1,0 (—), 1,3 (—), 1,8 (—), 2,3 (—) et 2,8 (—).**

## **Bilan**

Dans ce chapitre, on a décrit la modélisation utilisée pour la simulation de la configuration FIRST introduite dans le chapitre précédent. On a en particulier proposé une procédure pour la réduction des fluctuations de pression liées à des instabilités acoustiques d'origine numérique dans la chambre de combustion, ces dernières nuisant à la stabilisation de la flamme en aval des injecteurs. On a également détaillé la méthode d'identification des 9 espèces mises à l'équilibre dans la simulation, ainsi que la méthode mise en place pour valider le choix de celles-ci sur deux cas élémentaires, le réacteur à enthalpie et pression constantes et la flamme laminaire de prémélange librement propagative.

---

## Chapitre 9

# Analyse des résultats

---

L'objectif de ce chapitre est de proposer une analyse de la simulation de la configuration FIRST réalisée par la méthode couplée Euler-Lagrange, mise en place dans la partie précédente. On décrit tout d'abord les propriétés aérothermochimiques de l'écoulement dans la chambre de combustion. On insiste en particulier sur la caractérisation de la combustion dans la phase gazeuse et sur l'évolution de la phase dispersée. On confronte ensuite simulation numérique et mesures expérimentales afin de valider la méthodologie de calcul. La comparaison porte sur les champs de vitesse, de température, de radical OH, de PAH et de fraction volumique de suie. On s'intéresse enfin à l'impact du rayonnement des espèces gazeuses, ainsi que des particules de suie, sur l'écoulement et le flux de chaleur sur les parois latérales de la chambre.

### Sommaire

---

9.1	Aérothermochimie et évolution de la phase dispersée dans la configuration FIRST . . .	116
9.1.1	Aérodynamique de l'écoulement . . . . .	116
9.1.2	Structure de la flamme . . . . .	117
9.1.3	Évolution de la phase dispersée . . . . .	120
9.2	Comparaison aux mesures expérimentales . . . . .	127
9.2.1	Profils de vitesse . . . . .	127
9.2.2	Profils de température . . . . .	130
9.2.3	Champs de radical OH et de PAH . . . . .	130
9.2.4	Champ et profils de fraction volumique de suie . . . . .	130
9.3	Calcul complémentaire de puissances et flux radiatifs . . . . .	135
9.3.1	Méthode et modèles de calcul. . . . .	135
9.3.2	Champ de puissance radiative . . . . .	136
9.3.3	Champ de flux radiatif sur les parois latérales . . . . .	136
9.3.4	Contribution des particules de suie aux puissance et flux radiatifs . . . . .	136

---

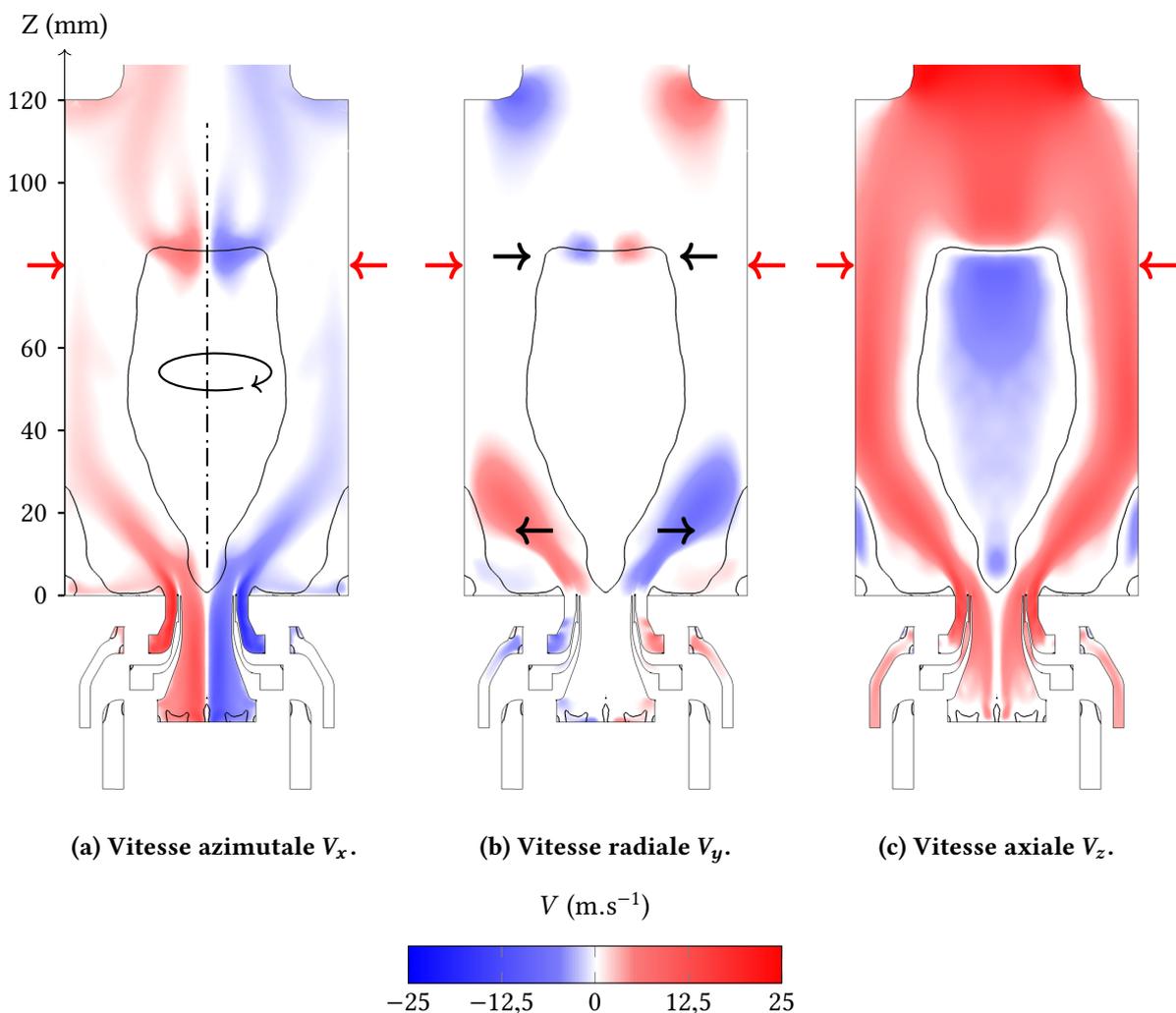


Atteindre une convergence statistique parfaite étant très coûteux en temps CPU, les champs moyens et RMS ont été obtenus sur un temps physique de 40 ms après le transitoire, ce qui est jugé suffisant pour ce travail de thèse. Les champs dans le plan médian de la chambre de combustion présentés sont néanmoins moyennés sur les deux plans de symétrie médians existants afin d'améliorer leur convergence. De même, les champs dans les plans transverses sont moyennés en exploitant les deux plans de symétrie.

## 9.1 Aérothermochimie et évolution de la phase dispersée dans la configuration FIRST

### 9.1.1 Aérodynamique de l'écoulement

La figure 9.1 représente le champ moyen des trois composantes de la vitesse dans le plan médian de la chambre de combustion. La composante axiale met en évidence deux zones de recirculation, délimitées par les iso-lignes de vitesse axiale nulle. La première est située au centre de la chambre et s'étend de l'injecteur principal aux injecteurs secondaires, la deuxième est, elle, localisée sur le fond de chambre. La flamme se stabilise entre ces deux zones, dans la région de grandes vitesses induite par les tuyères interne et externe d'injection d'air. Les composantes azimutales et radiales montrent respectivement la rotation et l'expansion de l'écoulement sous l'effet des étages de vrilles radiales de l'injecteur principal d'air dans la première moitié de la chambre, ainsi que sa contraction en aval des injecteurs secondaires, au sommet de la zone de recirculation interne.



**FIGURE 9.1 – Champs moyens des trois composantes de la vitesse dans le plan médian de la chambre de combustion et iso-lignes de vitesse axiale nulle.** Les flèches rouges indiquent la position des injecteurs secondaires et les flèches noires les caractéristiques majeures de l'écoulement.

Les structures aérodynamiques de l'écoulement sont illustrées plus en détail sur la figure 9.2, qui montre les lignes de courant dans le plan médian et dans le plan des injecteurs secondaires :

- **Plan médian** : les lignes de courant traversent la chambre, ou s'enroulent dans les deux zones de recirculation déjà identifiées.
- **Plan des injecteurs secondaires** : les lignes de courant alimentent la zone de recirculation interne en air frais ou sortent de la chambre.

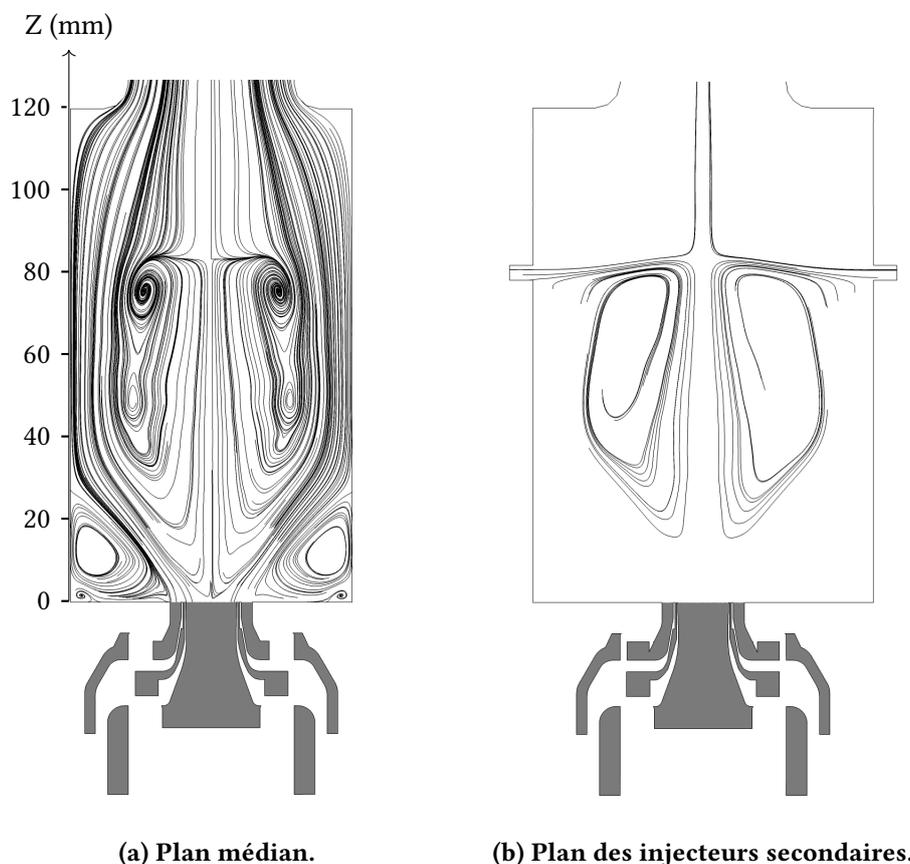


FIGURE 9.2 – Lignes de courant de l'écoulement moyen.

### 9.1.2 Structure de la flamme

#### Position de la flamme

La figure 9.3 représente le champ moyen de température dans le plan médian de la chambre de combustion, ainsi que dans des plans transverses à plusieurs hauteurs au-dessus du fond de chambre. La flamme y est identifiée par une iso-ligne du taux de consommation d'éthylène. Elle est globalement conique, du centre de l'injecteur principal vers les parois latérales, entre les deux zones de recirculation à nouveau mises en évidence par les iso-lignes de vitesse axiale nulle. Les gaz brûlés sont convectés le long des parois, à l'extérieur de la zone de recirculation interne, tandis que celle-ci est alimentée par l'air frais injecté dans la seconde moitié de la chambre. La position de l'iso-ligne de richesse unitaire montre que la combustion est proche de la stœchiométrie, ce qui est conforté par la figure 9.4 représentant le champ moyen de richesse dans le plan médian de la chambre, auquel est superposée la même iso-ligne du taux de consommation d'éthylène.

#### Intégrale du taux de dégagement de chaleur

La valeur moyenne de l'intégrale volumique du taux de dégagement de chaleur est égale à 39,1 kW, ce qui est comparable à la puissance théorique indiquée au chapitre 7 dans la définition du point de

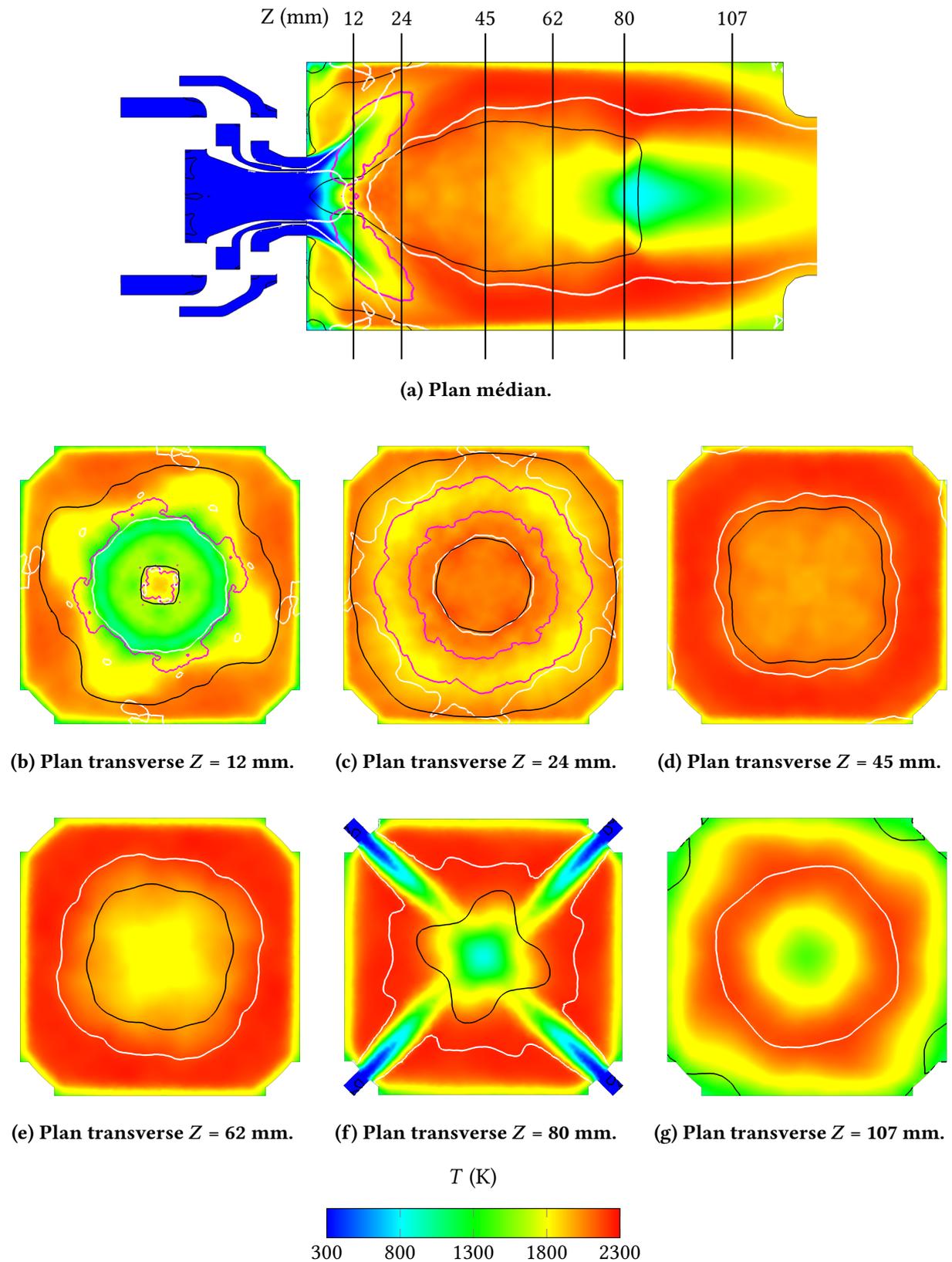
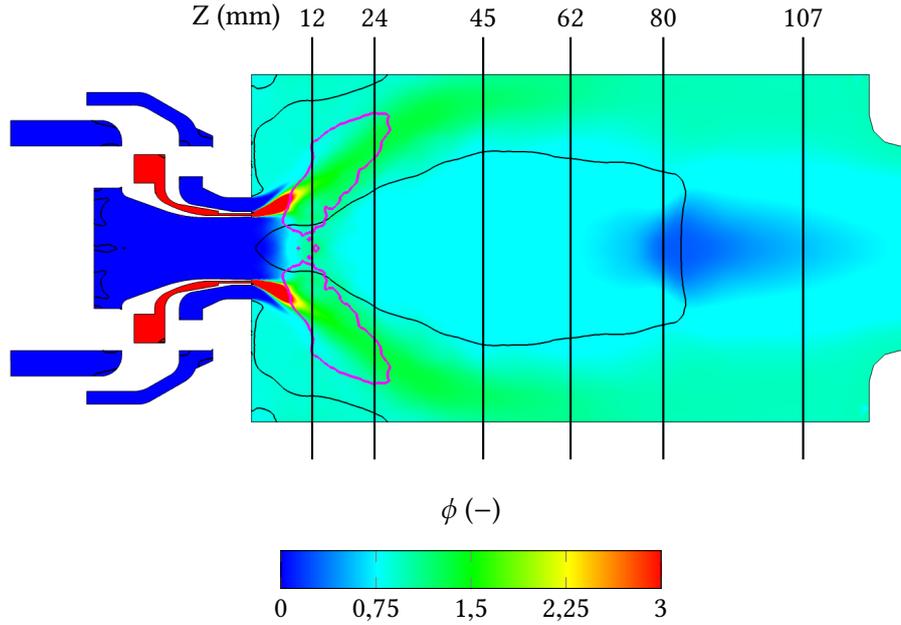


FIGURE 9.3 – Champ moyen de température dans la chambre de combustion, iso-lignes de vitesse axiale nulle (en noir), de richesse  $\phi = 1$  (en blanc) et de taux de consommation d'éthylène  $\dot{\omega}_{C_2H_4} = -15 \text{ kg.s}^{-1}.\text{m}^{-3}$  (en rose).



**FIGURE 9.4 – Champ moyen de richesse dans le plan médian de la chambre de combustion, iso-lignes de vitesse axiale nulle (en noir) et de taux de consommation d'éthylène  $\dot{\omega}_{C_2H_4} = -15 \text{ kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$  (en rose).**

fonctionnement simulé (38,6 kW). On notera que la contribution des sources de couplage des phases gazeuse et dispersée<sup>1</sup>, déterminée a posteriori et égale à 54,0 W, n'est pas prise en compte dans cette intégrale. Le dégagement de chaleur  $\dot{\omega}_T$  est en effet déterminé dans le code CEDRE par l'équation (9.1) :

$$\dot{\omega}_T = - \sum_{k=1}^N \dot{\omega}_k \Delta h_{f,k}^0, \quad (9.1)$$

avec  $N$  le nombre d'espèces transportées,  $\Delta h_{f,k}^0$  l'enthalpie spécifique de formation de ces espèces à la température de référence et  $\dot{\omega}_k$  leur taux de réaction massique – aux échelles résolues – dans le solveur CHARME uniquement. On remarquera aussi que les contributions des espèces mises à l'équilibre au dégagement de chaleur sont nulles par définition.

### Limites des états thermochimiques

La figure 9.5 présente sous la forme d'un nuage de points le niveau de température dans les cellules de la chambre de combustion en fonction de la richesse locale. Tous les points sont bien compris entre les – ou à défaut très proches des – deux limites physiques suivantes :

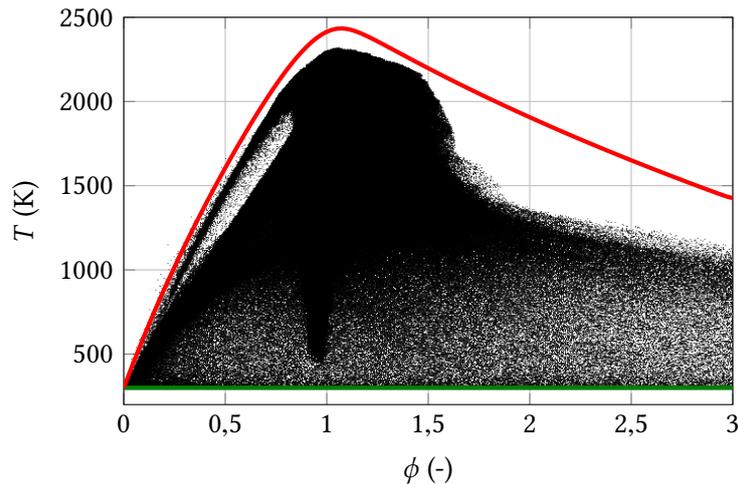
- **Mélange** : la température de mélange est la température des gaz frais définie par l'équation (9.2) :

$$T_m = T_f \cdot Z + T_o \cdot (1 - Z), \quad (9.2)$$

où  $T_f$  est la température du combustible,  $T_o$  celle de l'oxydant et  $Z$  la fraction de mélange, unitaire dans le combustible et nulle dans l'oxydant. Avec les conditions aux limites utilisées, elle est égale à 300 K quelle que soit la fraction de mélange, ou la richesse.

- **Équilibre HP** : la température adiabatique est la température maximale atteinte par le mélange de gaz frais à une richesse donnée, à pression et enthalpie constantes. Elle est estimée sous *Cantera* à une pression de 3 bar et pour une température des gaz frais de 300 K, en ne considérant que les 42 espèces du mécanisme squelettique introduit au chapitre 2.

1. Ceci inclut les sources de masse des espèces consommées et produites par la croissance et l'oxydation des suies.



**FIGURE 9.5 – Population de l'espace température moyenne - richesse locale moyenne dans la chambre de combustion et limites physiques : température de mélange (—) et température adiabatique (—).**

### Régimes de combustion

La figure 9.6 présente la distribution du dégagement de chaleur dans les cellules de la chambre en fonction de la richesse locale. Sa répartition entre les trois régimes de combustion usuels est également indiquée. Pour cela, le régime est préalablement identifié selon les travaux de thèse de Boucher [8] en fonction de l'indice de Takeno  $\mathcal{T}_k$ ,

$$\mathcal{T}_k = \frac{\nabla Y_{O_2} \cdot \nabla Y_{C_2H_4}}{\|\nabla Y_{O_2}\| \cdot \|\nabla Y_{C_2H_4}\|}, \quad (9.3)$$

comme suit :

- **Prémélange** : les gradients de fraction massique d'oxydant et de combustible sont de même direction et de même sens. Dans ce cas,

$$\zeta_p = \max[0, \mathcal{T}_k] = 1. \quad (9.4)$$

- **Diffusion** : les gradients sont de même direction mais de sens opposé. Dans ce cas,

$$\zeta_d = \max[0, -\mathcal{T}_k] = 1. \quad (9.5)$$

- **Prémélange partiel** : les gradients n'ont pas la même direction. Dans ce cas,

$$\zeta_{pp} = 1 - |\mathcal{T}_k| > 0, \quad (9.6)$$

où  $\zeta_{pp}$  représente l'écart – en terme de régime de combustion – aux deux régimes asymptotiques précédents.

Le dégagement de chaleur est maximal autour de la stœchiométrie, ce que suggérait déjà la figure 9.4, en régime de prémélange partiel. Une contribution importante, associée au point de fonctionnement de l'injecteur principal, est aussi perceptible à la richesse 1,2, où la production de suie atteint son maximum comme le montre la figure 9.7.

#### 9.1.3 Évolution de la phase dispersée

La figure 9.8 présente les champs moyens de fraction volumique de suie et de diamètre  $d_{10}$  des particules dans le plan médian de la chambre de combustion. La fraction volumique est élevée dans la

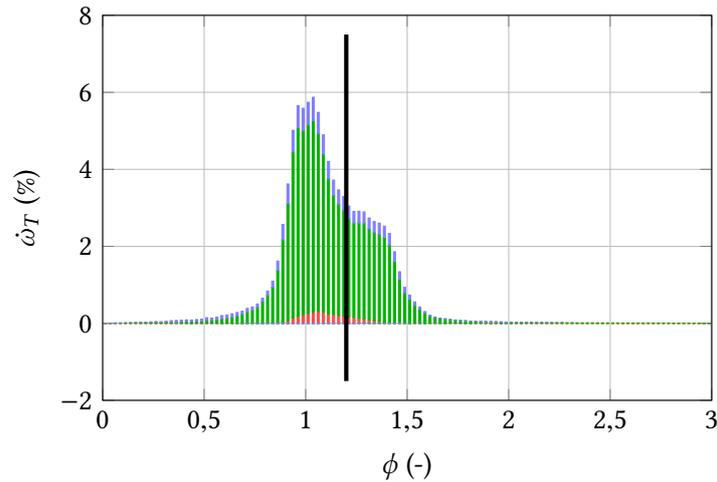


FIGURE 9.6 – Distribution du taux de dégagement de chaleur moyen dans la chambre de combustion en fonction de la richesse locale moyenne, colorée selon le régime de combustion : diffusion (■), prémélange partiel (■) et prémélange (■).

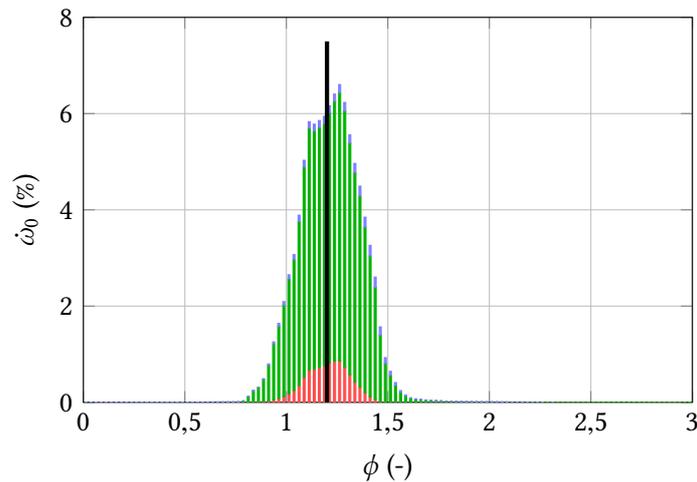


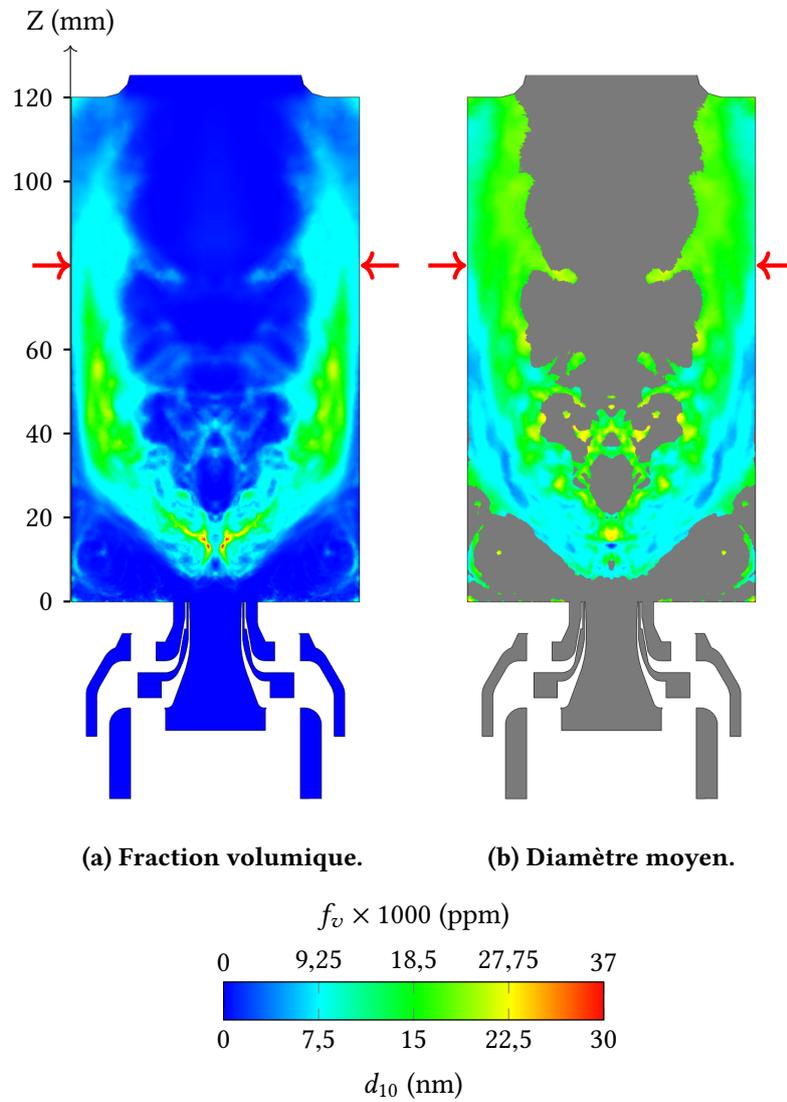
FIGURE 9.7 – Distribution du taux de nucléation de suie moyen dans la chambre de combustion en fonction de la richesse locale moyenne, colorée selon le régime de combustion : diffusion (■), prémélange partiel (■) et prémélange (■).

flamme et la partie inférieure de la zone de recirculation interne. Elle atteint un maximum local dans les gaz brûlés au-dessus de la zone de recirculation externe, diminue le long des parois latérales, et aussi fortement en direction du fond de chambre. On notera aussi la présence à son niveau de plusieurs petits pics de fraction volumique dus aux particules piégées dans la région de vitesse axiale négative précédemment identifiée. Le diamètre moyen  $d_{10}$  est élevé dans la partie inférieure de la zone de recirculation interne ainsi que dans la zone de recirculation externe. Il est faible dans la flamme, jusqu'aux parois latérales et augmente le long de celles-ci. On remarquera qu'il n'est représenté que dans les cellules où la fraction volumique dépasse 8,1 % de sa valeur maximale dans le plan, afin de simplifier la visualisation des régions d'intérêts.

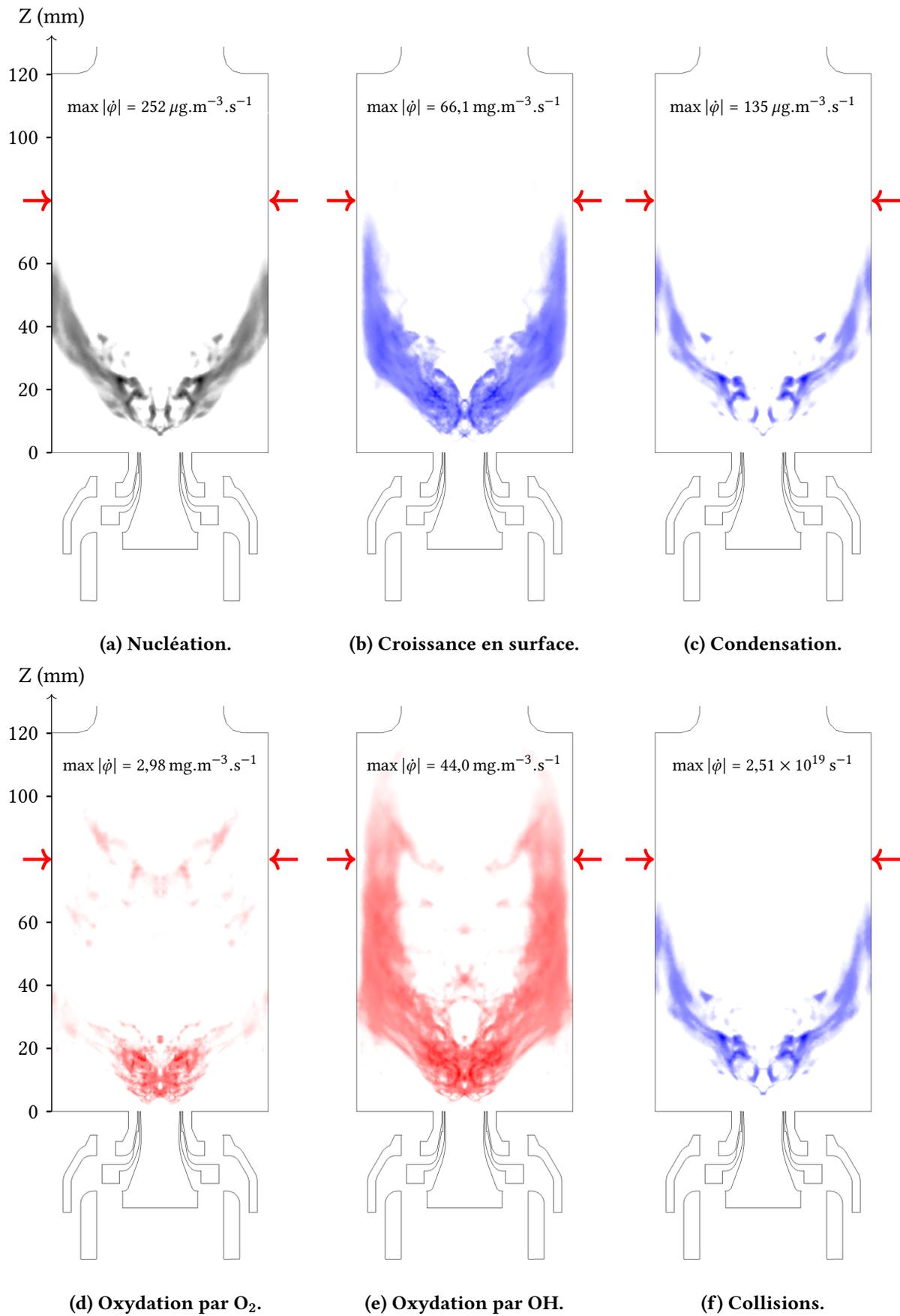
Pour aller plus loin, la figure 9.9 présente les champs moyens des taux d'évolution des particules dans le plan médian de la chambre de combustion. Ces taux sont le terme source de nucléation de suie, les termes sources de consommation du réactant R (cf. (3.1)) associé à chaque sous-modèle d'évolution

chimique et le taux de collision des particules, sans distinction possible des phénomènes de coalescence et de pseudo-agrégation. Ils sont tous normalisés entre 0 et 1, où 1 correspond à leur intensité maximale en valeur absolue, dans le but de mettre en évidence les régions d'occurrence des processus de nucléation, de croissance et d'oxydation des suies. Comme le montre la figure, la nucléation intervient dans la flamme, en bordure de la zone de recirculation interne et persiste jusqu'aux parois latérales de la chambre. La distribution spatiale des taux de croissance en surface et de condensation est analogue à celle du taux de nucléation, ce qui n'est pas surprenant car les espèces impliquées dans ces phénomènes sont toutes liées par le modèle sectionnel de PAH utilisé. De même, le taux de collision est important dans les régions de nucléation, où le nombre de particules est élevé. L'oxydation des suies a quant à elle lieu dans la flamme, dans la partie inférieure de la zone de recirculation interne, ainsi qu'au niveau des injecteurs secondaires. Les particules sont aussi oxydées par le radical OH – produit par la combustion de l'éthylène – dans les gaz brûlés le long des parois latérales, alors que l'oxydation par  $O_2$  est moindre dans cette région. L'espèce  $O_2$  est en effet consommée en amont et réinjectée seulement dans la partie supérieure de la chambre de combustion.

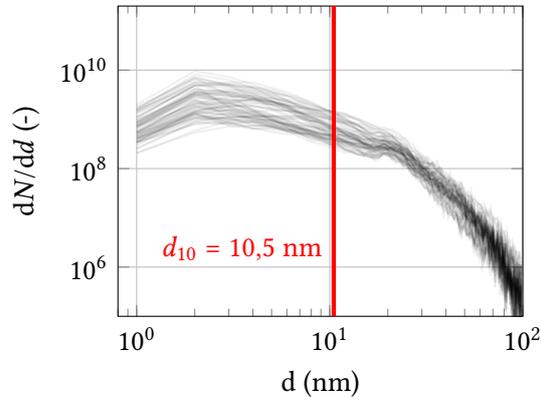
Les zones de fraction volumique élevée sont localisées dans les régions de nucléation et de croissance des particules en aval de la flamme et à proximité des parois latérales. Les zones de faible fraction volumique sont, elles, localisées dans les régions d'oxydation, en amont et au niveau des injecteurs secondaires. On notera que les particules présentes dans la partie supérieure de la zone de recirculation interne et dans la zone de recirculation externe n'y sont pas produites, elles y sont transportées à condition de ne pas être totalement oxydées avant de les atteindre. L'augmentation du diamètre moyen des particules est par ailleurs limitée près de la flamme, du fait de la concurrence des phénomènes de nucléation, de croissance et d'oxydation. À l'entrée de la zone de recirculation externe et le long des parois, l'oxydation des plus petites sphérules jusqu'à leur disparition conduit néanmoins à l'accroissement du  $d_{10}$  dans ces régions. Pour le confirmer, la figure 9.10 présente une superposition des distributions en taille instantanées des particules à plusieurs hauteurs au-dessus du fond de chambre et met en évidence la distribution la plus probable dans chacune des dix zones définies. Comme attendu, la contribution des petites sphérules diminue en-deçà de 24 et au-delà de 48 mm au-dessus du fond de chambre, sans que le nombre de particules de grand diamètre n'augmente outre mesure. On remarquera aussi la fluctuation de la PSD dans la région entre 12 et 84 mm, qui atteste de l'instationnarité de la nucléation et des processus d'évolution des sphérules. Ceci est également visible sur les distributions en taille présentées par Rodrigues dans ses travaux de thèse [90].



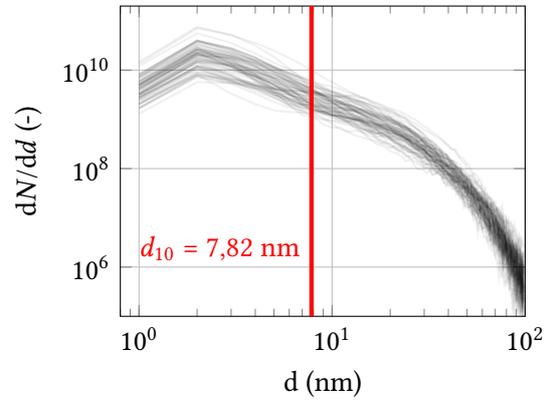
**FIGURE 9.8 – Champs moyens de fraction volumique de suie et de diamètre  $d_{10}$  des particules dans le plan médian de la chambre de combustion. Les flèches rouges indiquent la position des injecteurs secondaires.**



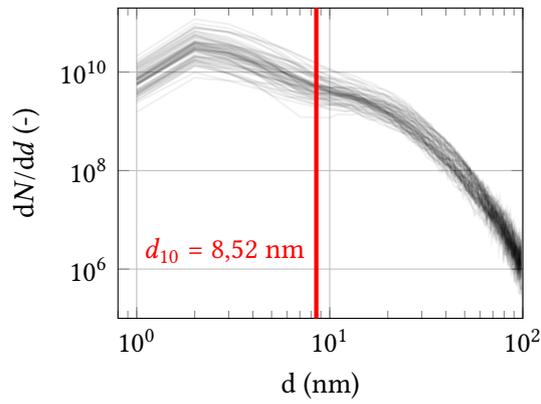
**FIGURE 9.9 – Champs moyens des taux d'évolution ( $\dot{\phi}$ ) des particules dans le plan médian de la chambre de combustion. L'intensité est croissante du blanc au rouge/bleu/noir. Les flèches indiquent la position des injecteurs secondaires. Le taux de condensation est celui de  $\text{PAH}_2$  dont la topologie est représentative des autres  $\text{PAH}^{(*)}$  (cf. Annexe B).**



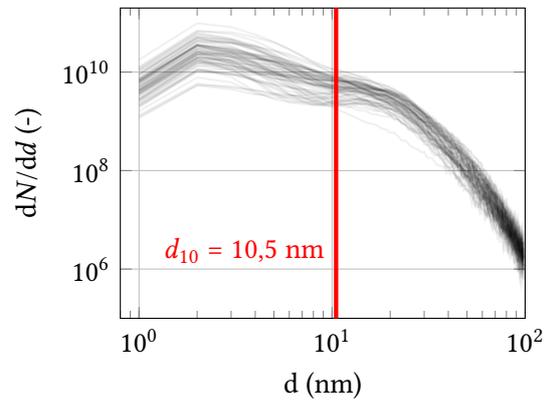
(a)  $0 \leq Z < 12$  mm.



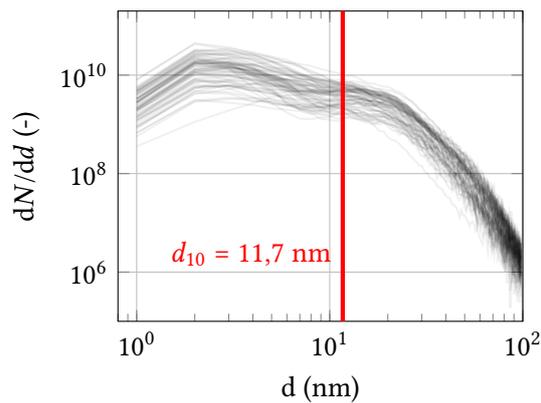
(b)  $12 \leq Z < 24$  mm.



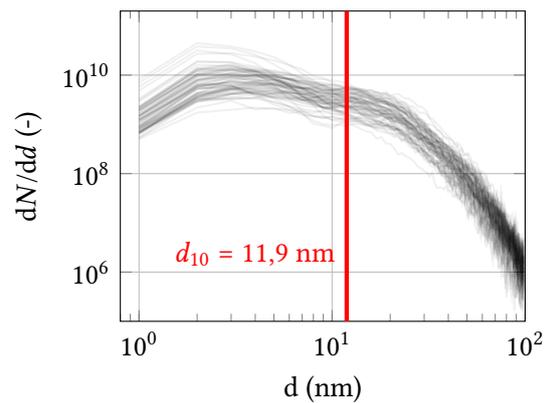
(c)  $24 \leq Z < 36$  mm.



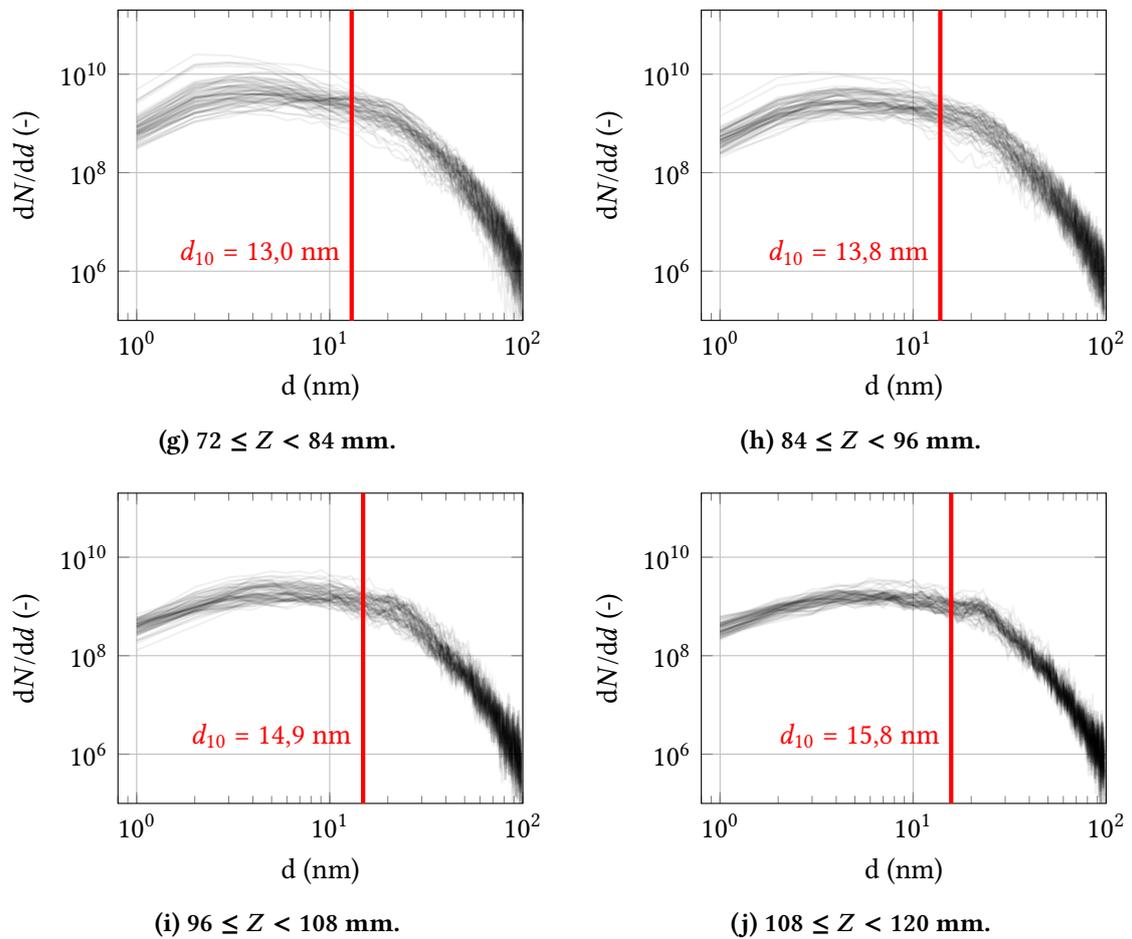
(d)  $36 \leq Z < 48$  mm.



(e)  $48 \leq Z < 60$  mm.



(f)  $60 \leq Z < 72$  mm.



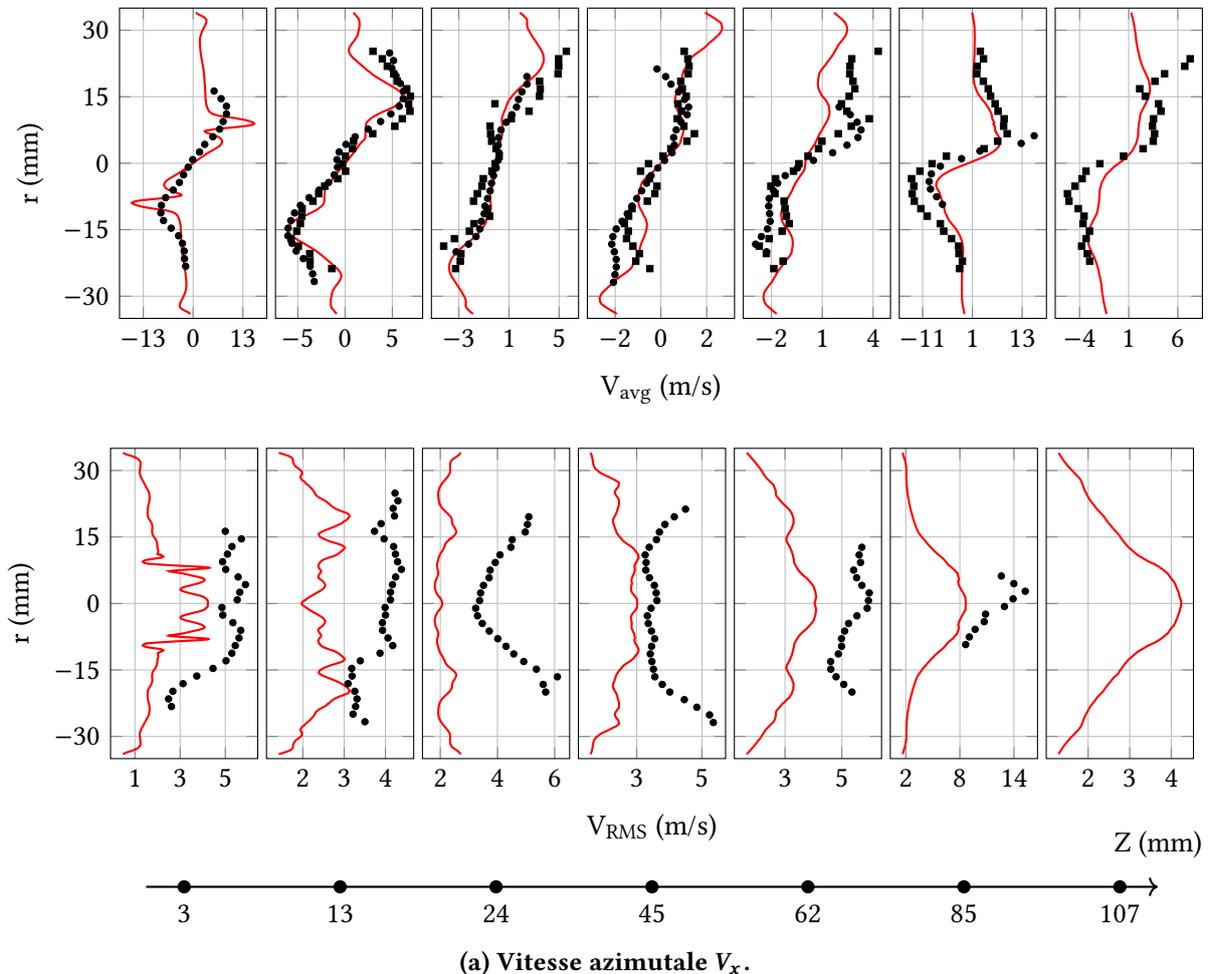
**FIGURE 9.10 – Distributions en taille instantanées des particules dans dix tranches de la chambre de combustion définies en fonction de la hauteur au-dessus du fond de chambre.** La distribution la plus probable apparaît en noir dans chaque tranche par superposition des distributions instantanées. Les distributions ont été extraites toutes les 7,2 ms et le trait rouge représente la moyenne temporelle sur celles-ci du diamètre moyen des particules dans chaque tranche.

## 9.2 Comparaison aux mesures expérimentales

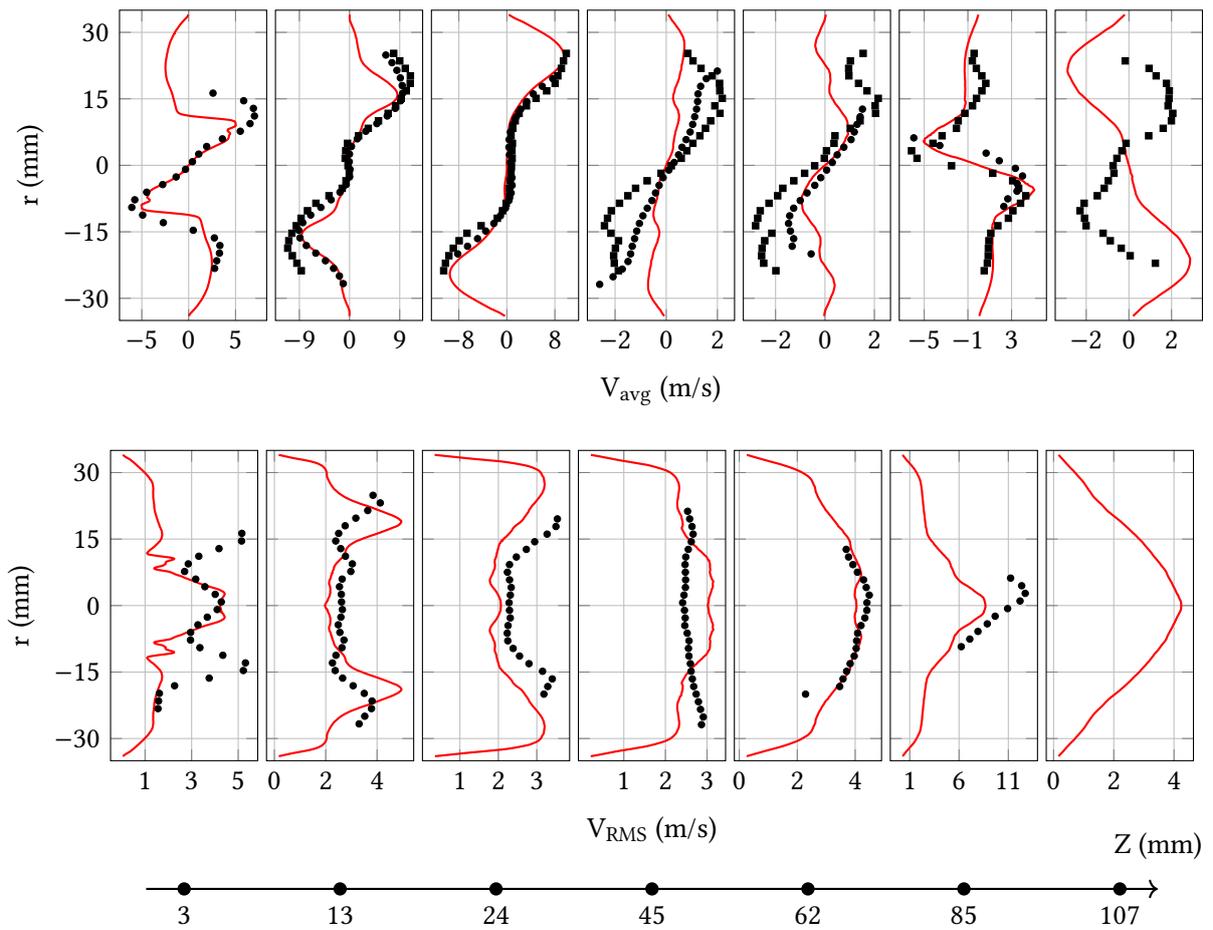
Afin de valider la méthode couplée Euler-Lagrange développée dans ce travail de thèse pour la description de la formation et de l'évolution des particules de suie, la simulation numérique et les mesures expérimentales doivent être confrontées.

### 9.2.1 Profils de vitesse

La figure 9.11 présente les profils radiaux moyen et RMS des trois composantes de la vitesse dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond. Jusqu'à une hauteur de 24 mm, la forme ainsi que le niveau des profils sont globalement en bon accord avec les mesures. L'expansion radiale de l'écoulement à la sortie de l'injecteur tend toutefois à être surestimée en-deçà de 24 mm au-dessus du fond de chambre, comme le montrent la position et la largeur des pics de vitesses  $V_z$  moyenne et RMS. Le profil de vitesse axiale à 3 mm indique aussi que la zone de recirculation interne remonte moins vers la tuyère centrale dans l'expérience que dans la simulation. Au-delà de 24 mm, les écarts entre simulation numérique et mesures expérimentales restent raisonnables, à l'exception des profils SoC à 107 mm au-dessus du fond de chambre pour  $V_y$  et FoV à 85 mm pour  $V_z$  qui exhibent un comportement très pathologique<sup>2</sup>.



2. Les profils SoC à 107 mm et FoV à 85 mm au-dessus du fond de chambre sont à la limite de la zone de mesure pour les deux méthodes.



(b) Vitesse radiale  $V_y$ .

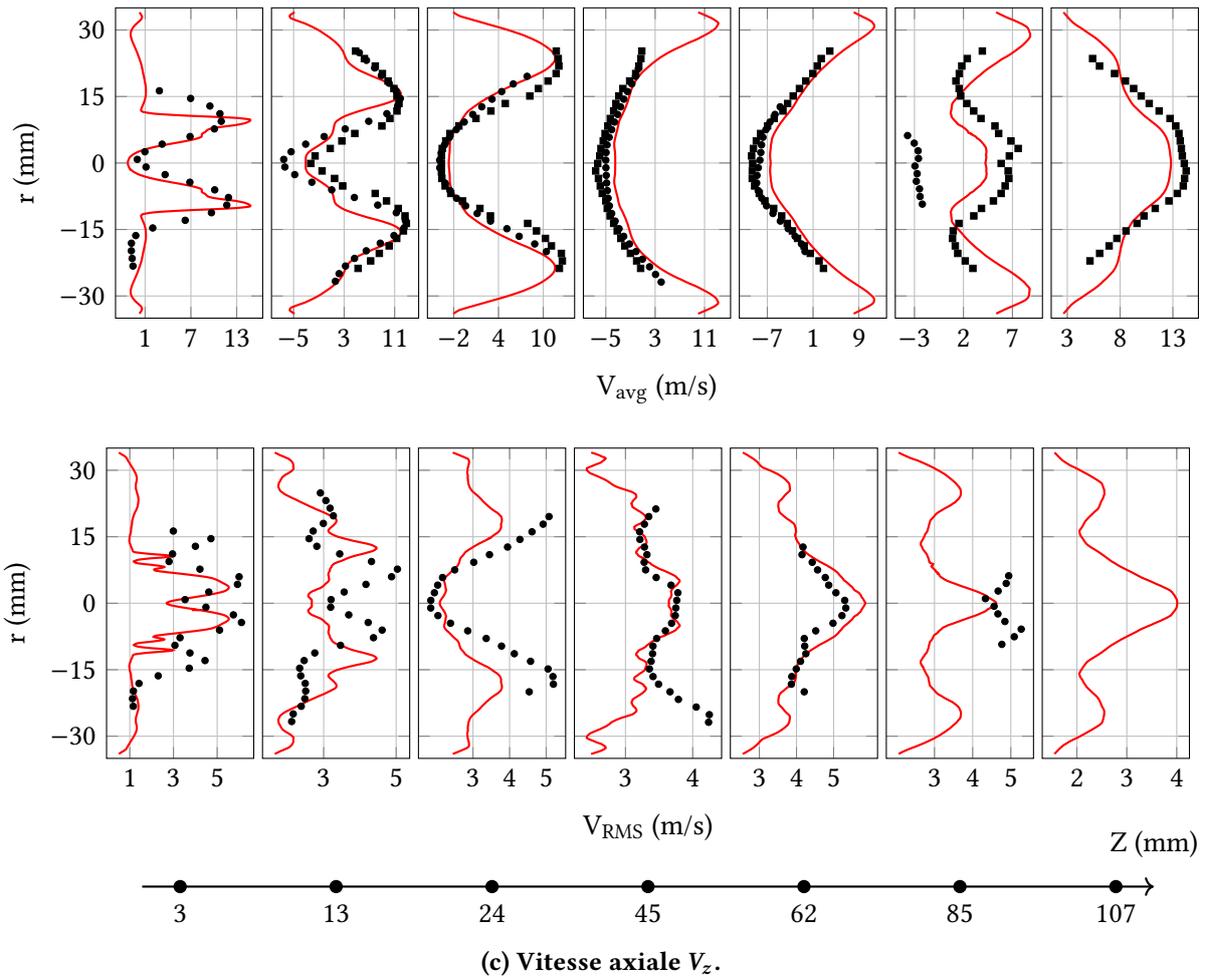


FIGURE 9.11 – Profils radiaux des trois composantes de la vitesse moyenne et RMS dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond : CEDRE (lignes), PIV-SoC (■), PIV-FoV (●).

### 9.2.2 Profils de température

Les figures 9.12 et 9.13 présentent les profils de températures moyenne et RMS, respectivement à plusieurs hauteurs au-dessus du fond de chambre dans le plan médian de la géométrie et le long de son axe. L'intervalle de température couvrant 90 % des mesures CARS instantanées y est également tracé en chaque point à titre indicatif. À 3 et 12 mm au-dessus du fond de chambre, les profils montrent que le niveau moyen de température en aval de l'injecteur est surestimé près de l'axe en suivant l'expansion radiale de l'écoulement. La flamme semble donc stabilisée plus près de la sortie des tuyères d'injection dans la simulation numérique que dans l'expérience. La température moyenne dans la zone de recirculation externe est également légèrement surestimée, comme le montre le profil à 3 mm du fond de chambre. Ceci peut être associé directement au choix de la température à la paroi. En la fixant à 500 et 600 K respectivement, Dupoirieux et al. [22] et Grader et al. [49] obtiennent de fait des niveaux de température plus faibles pour ce même profil. Au-delà de 24 mm et dès 12 mm le long de l'axe, la simulation numérique et les mesures expérimentales sont en bon accord. La température moyenne est toutefois sous-estimée à l'extrémité aval de la zone de recirculation interne, dans la région de mélange des gaz chauds et de l'air frais injecté. Ceci était également visible dans l'étude menée par Dupoirieux et al., avec une méthode de tabulation FPI couplée à l'approche DTFLES, ce qui suggère une faiblesse de la discrétisation spatiale et/ou de la description de la turbulence à cette hauteur. Les écarts entre simulation numérique et mesures expérimentales sont par ailleurs raisonnables pour la température RMS. Ils sont maximaux à proximité du fond de chambre à la sortie du système d'injection et à l'extrémité aval de la zone de recirculation interne.

### 9.2.3 Champs de radical OH et de PAH

La figure 9.14 confronte les champs moyens de fluorescence du radical OH et de sa fraction massique dans le plan médian de la chambre de combustion, sans échelle car toute comparaison quantitative est impossible. Les topologies des deux champs sont en bon accord, le radical OH est en effet bien présent dans la flamme, en aval de laquelle sa concentration atteint un maximum local, ainsi qu'en bordure de la zone de recirculation interne. De même, la figure 9.15 compare les champs moyens de fluorescence des PAH et de fraction massique de l'espèce  $\text{PAH}_0$ . L'accord entre les topologies des deux champs est à nouveau satisfaisant. Ces PAH, dont la masse molaire est comprise entre 100 et 200 amu, sont bien situés dans et en aval de la flamme. Les régions de nucléation, de croissance et d'oxydation des particules de suie dues aux espèces OH et  $\text{PAH}_0$  sont donc – a priori – correctement localisées dans la simulation.

### 9.2.4 Champ et profils de fraction volumique de suie

La figure 9.16 compare les champs moyens de fraction volumique de suie dans le plan médian de la chambre de combustion. L'accord entre les topologies des deux champs est satisfaisant. Les particules de suie sont présentes à proximité de la flamme, dans les gaz brûlés le long des parois latérales et dans la zone de recirculation externe. Elles sont absentes du centre de la zone de recirculation interne et tendent à disparaître près des injecteurs secondaires. Les niveaux de fraction volumique sont aussi cohérents entre simulation et mesures expérimentales. Leurs valeurs maximales sont en effet égales à 0,038 et 0,037 ppm respectivement. Les écarts constatés sur les pics des profils tracés à plusieurs hauteurs au-dessus du fond de chambre sur la figure 9.17 sont, eux, inférieurs à un facteur 4 (expérience/simulation), excepté à 24 mm où la fraction volumique de suie est maximale sur l'axe dans l'expérience et nulle dans la simulation. La distance à l'axe des pics observés à 45 et 62 mm au-dessus du fond de chambre est également surestimée, possiblement du fait de la description imparfaite de l'aérodynamique de l'écoulement – visible sur les profils de vitesses moyennes – et de la dynamique des particules. Sans caractérisation supplémentaire de la phase dispersée par l'expérience, il est toutefois impossible de conclure sur ce dernier point.

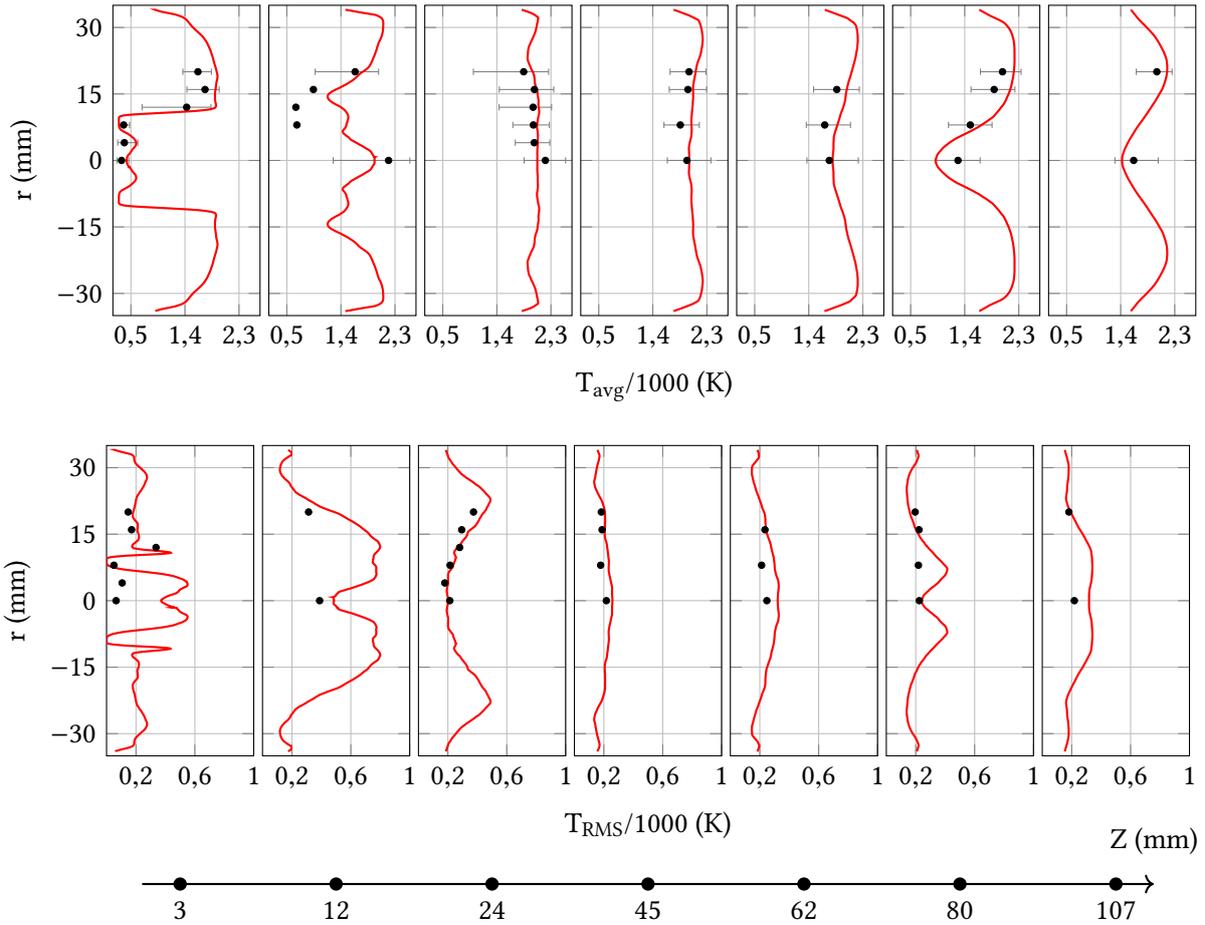


FIGURE 9.12 – Profils radiaux de températures moyenne et RMS dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond : CEDRE (lignes), CARS (symboles). Les barres d'erreur représentent les intervalles couvrant 90 % des mesures CARS instantanées.

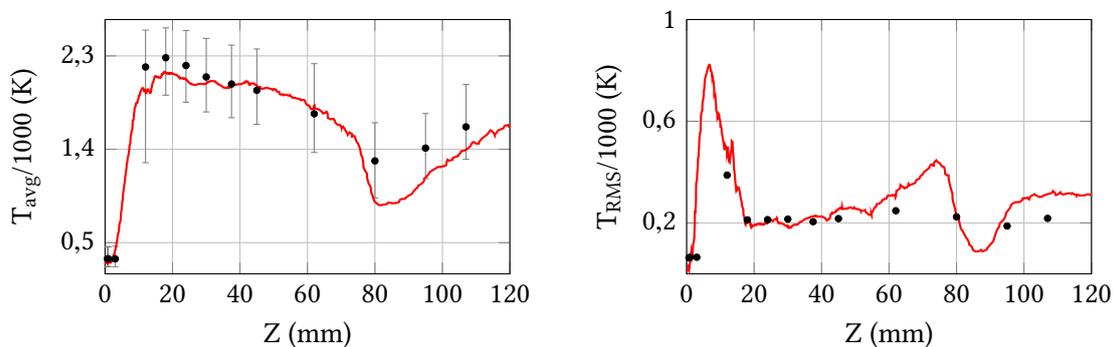
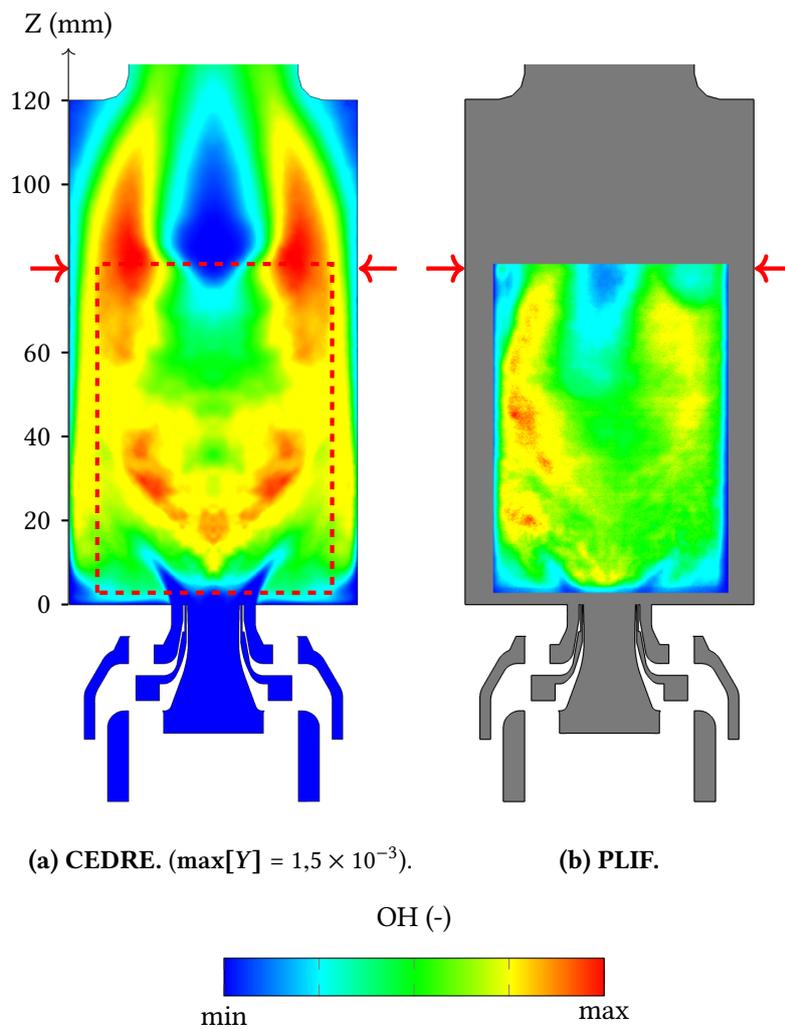


FIGURE 9.13 – Profils de températures moyenne et RMS sur l'axe de la chambre de combustion en fonction de la hauteur au-dessus de son fond : CEDRE (lignes), CARS (symboles). Les barres d'erreur représentent les intervalles couvrant 90 % des mesures CARS..



**FIGURE 9.14 – Champs moyens de fraction massique et de fluorescence du radical OH dans le plan médian de la chambre de combustion. La moitié gauche du champ PLIF est la plus significative.**

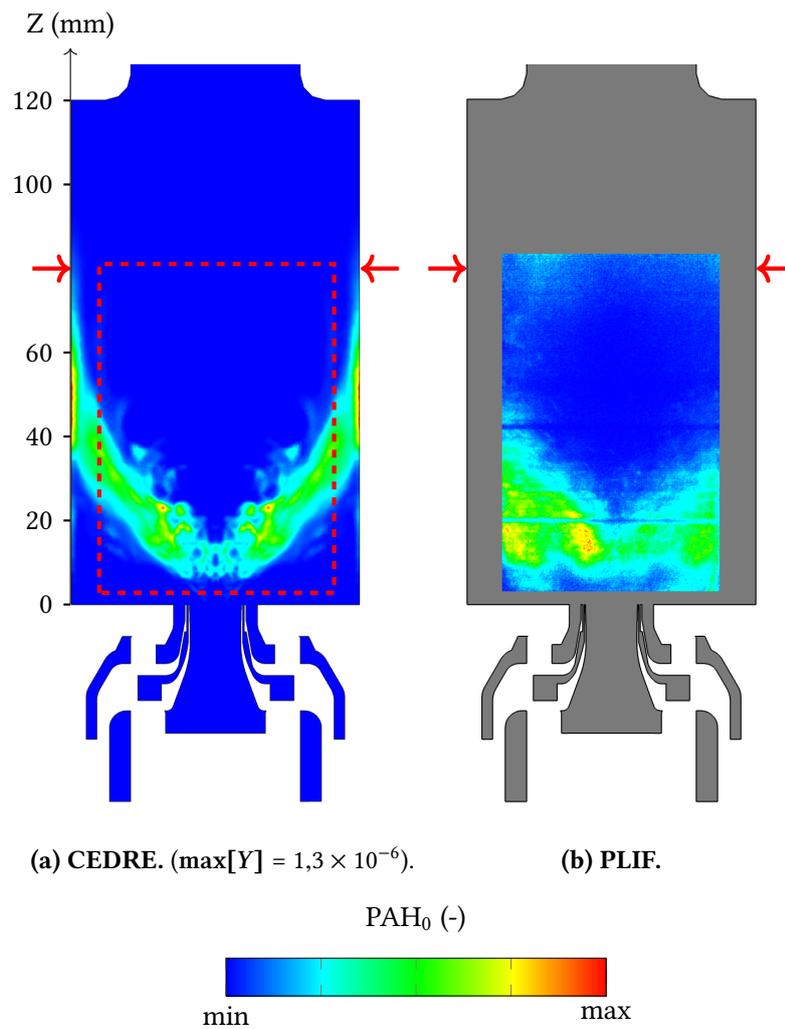


FIGURE 9.15 – Champs moyens de fraction massique et de fluorescence de PAH<sub>0</sub> dans le plan médian de la chambre de combustion.

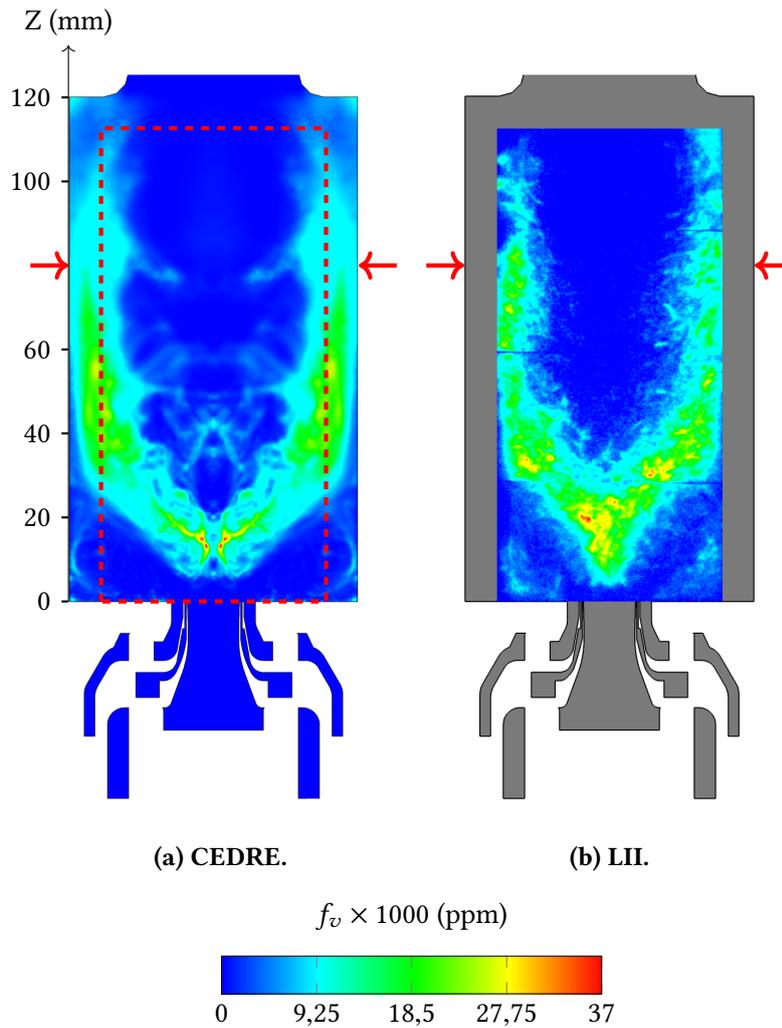


FIGURE 9.16 – Champ moyen de fraction volumique de suie dans le plan médian de la chambre de combustion.

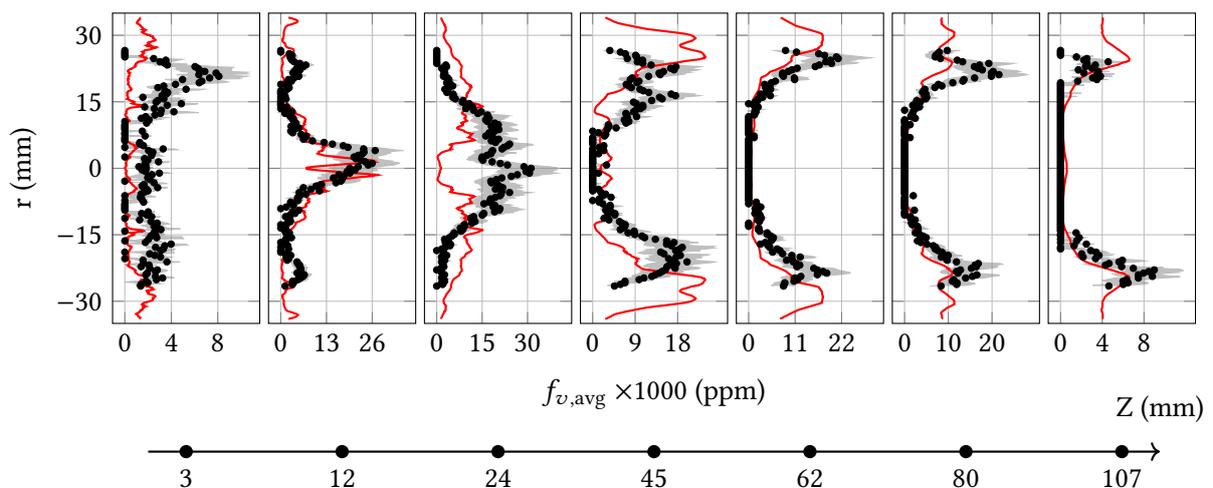


FIGURE 9.17 – Profils radiaux de fraction volumique de suie moyenne dans le plan médian de la chambre de combustion à plusieurs hauteurs au-dessus de son fond : CEDRE (lignes), LII (●). Les zones grises représentent l'incertitude de 30 % sur les mesures.

## 9.3 Calcul complémentaire de puissances et flux radiatifs

Afin d'évaluer l'impact du rayonnement des espèces gazeuses, ainsi que des particules de suie, sur l'écoulement et le flux de chaleur sur les parois de la chambre de combustion, un calcul de transferts radiatifs est réalisé en post-traitement sur le champ aérothermochimique moyen obtenu précédemment.

### 9.3.1 Méthode et modèles de calcul

Une description complète de l'équation des transferts radiatifs et des méthodes numériques de résolution associées dépasse la portée de ce travail de thèse. Le lecteur est invité à consulter [102] et [20] pour plus de détails.

La méthodologie déjà mise en œuvre sur la configuration FIRST dans le cadre du projet ANR (Agence Nationale de la Recherche) SMART-LECT (Soot formation Modelling And Radiative Transfers for Low Emission Combustion Technologies) est en partie reprise [37]. Le code ASTRE de calcul de transferts radiatifs, développé à l'ONERA, est ainsi utilisé. Il est basé sur une méthode de Monte-Carlo, dans laquelle des paquets de photons sont émis aléatoirement et suivis le long de leurs trajectoires pour déterminer la puissance radiative moyenne en chaque cellule du maillage. Les propriétés optiques du milieu traversé – sa transmittivité ou son coefficient d'absorption – sont pour cela modélisées en fonction des paramètres physiques des phases gazeuse et dispersée.

L'absorption du gaz est décrite par un modèle MSBE [100, 102] (Modèle Statistique à Bandes Étroites), adapté au rayonnement de flammes à pression quelconque. Ce modèle autorise la prise en compte de l'absorption des espèces  $H_2O$ ,  $CO_2$  et  $CO$  dans l'intervalle de nombres d'onde  $[37,5 ; 11\,262,5\text{ cm}^{-1}]$ , discrétisé en 449 bandes de largeur variable. Pour chaque bande, la transmittivité moyenne du milieu est calculée en fonction de la température, de la pression et de la fraction molaire des espèces, ainsi que de paramètres pré-tabulés dans l'espace nombre d'onde-température [89].

La température maximale des particules de suie, égale à celle du gaz, est proche de 2300 K. Le nombre d'onde auquel leur rayonnement émis a une énergie maximale, donné par la loi de Wien sous l'hypothèse de corps noir, est donc :

$$\nu_m = 1,961\text{ K}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot T \sim 4510\text{ cm}^{-1}. \quad (9.7)$$

Aussi, 98 % de l'énergie est émise dans le domaine spectral  $[\nu_m/4; 4\nu_m] = [1128 ; 18\,040\text{ cm}^{-1}]$ . 90 bandes de  $100\text{ cm}^{-1}$  sont donc ajoutées à l'intervalle de nombres d'onde hérité de la phase gazeuse pour couvrir la totalité du spectre. Le rayonnement des suies est décrit selon la théorie de Mie [101], valable pour les petites particules sphériques, homogènes et isothermes<sup>3</sup> considérées dans ces travaux. Leur diffusion est ici négligée devant leur absorption. Ce régime, appelé régime de Rayleigh, suppose que leur diamètre est très petit devant toutes les longueurs d'onde du spectre de rayonnement, ce qui est raisonnable à la vue du champ de  $d_{10}$  et des distributions en taille des particules présentés sur les figures 9.8 et 9.10. On notera que sa modélisation deviendrait nécessaire pour des agrégats de grande taille, dont la formation pourrait être décrite par l'algorithme proposé au chapitre 4. Le coefficient d'absorption moyen des suies, exprimé en  $\text{cm}^{-1}$ , est déterminé par l'équation (9.8) [101] :

$$\kappa_\nu^{sui} = A_\nu \nu f_\nu, \quad (9.8)$$

où  $\nu$  est le nombre d'onde en  $\text{cm}^{-1}$  au centre d'une bande spectrale,  $A_\nu$  la constante d'absorption égale à  $550^4$  et  $f_\nu$  la fraction volumique des particules.

Pour le calcul de transferts radiatifs, des parois grises d'émissivité standard  $\epsilon = 0,8$  et à la surface desquelles la réflexion des photons est diffuse sont utilisées. La température des parois latérales et du

3. i.e. de composition et température uniformes en volume

4. L'indice optique complexe des suies est ici constant. La discussion de cette hypothèse dépasse le cadre de ce travail.

fond de chambre, inchangée par rapport à la simulation précédente, est fixée à 800 K. Celle des autres parois dans le système d'injection est fixée à 300 K en accord avec la température des gaz frais à leur contact. Les entrées et sorties du domaine, qui caractérisent le rayonnement entrant dans celui-ci, sont modélisées par des faces non réfléchissantes d'émissivité unitaire à la température de 300 K. Sous ces conditions, on considère que les photons émis dans la chambre et en sortant ont une probabilité quasi-nulle d'y revenir.

Le calcul a été réalisé en 14 heures sur 70 processeurs Intel Xeon E5-2680v4 à 14 cœurs et cadencés à 2,4 GHz du calculateur scalaire Sator (ONERA). 98 milliards de photons numériques ont été considérés et la convergence du calcul a été vérifiée a posteriori. L'écart-type moyen de la puissance radiative dans la chambre de combustion est de fait égal à 0,1 % de la puissance moyenne en valeur absolue, celui du flux radiatif sur les parois latérales à 0,1 % du flux moyen en valeur absolue.

### 9.3.2 Champ de puissance radiative

Le tableau 9.1 confronte les puissances moyennes émise et absorbée en volume dans le domaine de calcul, ainsi que par les limites. Il montre en particulier que l'absorption ne peut être négligée devant l'émission, contrairement à l'hypothèse de milieu optiquement mince faite dans certaines études citées au chapitre 7.

	Milieu (volume)	Parois	Entrées/Sorties
<b>Émission</b>			
Puissance [kW]	4,67	0,704	0,173
<b>Absorption</b>			
Puissance [kW]	2,79	2,11	0,621

TABLE 9.1 – Puissances émise et absorbée en volume et aux limites dans le domaine de calcul.

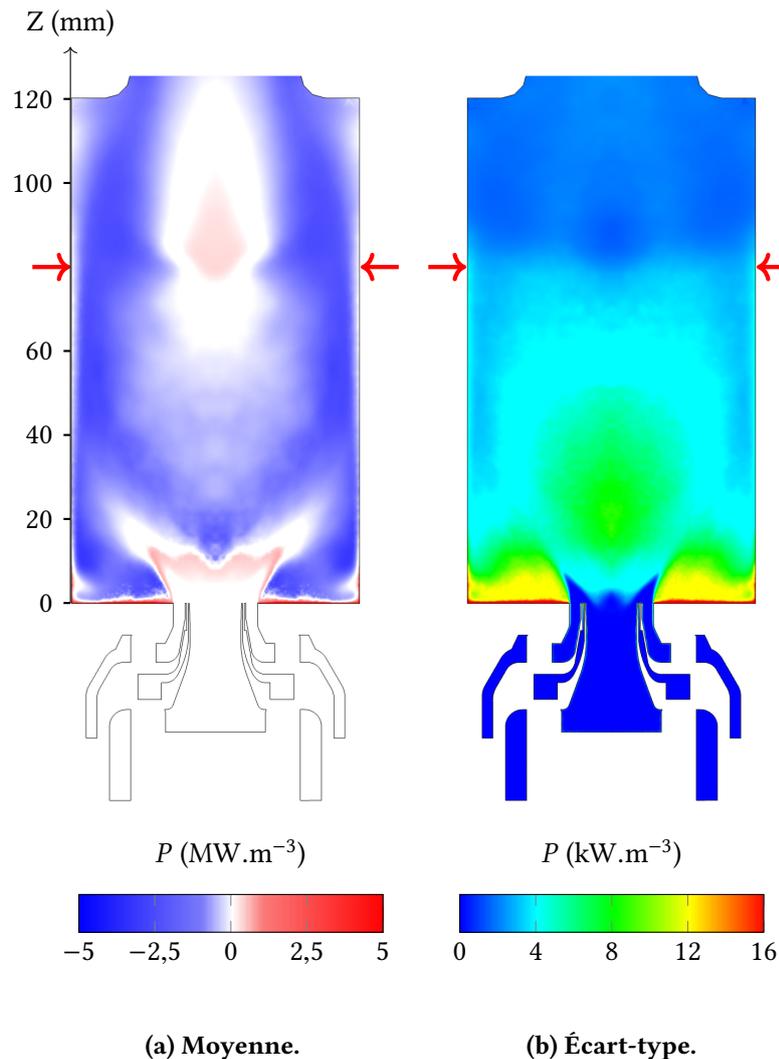
La figure 9.18 présente le champ de puissance radiative moyenne dans le plan médian de la chambre de combustion. La puissance radiative, égale à la différence des puissances absorbée et émise, est négative dans les zones de recirculation et en aval de la flamme, le long des parois latérales. La température diminuerait donc dans ces régions pour un calcul couplé phase gazeuse-phase dispersée-rayonnement. Ceci pourrait en outre améliorer la prédiction de la température moyenne dans la zone de recirculation externe, de l'ouverture de l'écoulement en sortie d'injecteur et de la position de la flamme. La puissance radiative est positive en aval de la zone de recirculation interne. La température augmenterait ainsi dans cette région, ce qui est en accord avec la sous-estimation de la température moyenne constatée à cette hauteur sur la figure 9.13 et les mesures CARS.

### 9.3.3 Champ de flux radiatif sur les parois latérales

La figure 9.19 présente le champ de flux radiatif moyen aux parois latérales de la chambre. Le flux radiatif est positif, le rayonnement des espèces gazeuses et des particules de suie dans le volume contribue donc à augmenter la charge thermique pariétale, comme indiqué en introduction. Il reste cependant petit devant le flux convectif, aussi présenté sur la figure 9.19. On notera que ce flux convectif – calculé sur le champ moyen de la phase gazeuse – est très imparfaitement résolu par le maillage et ne constitue en conséquence qu'une estimation.

### 9.3.4 Contribution des particules de suie aux puissance et flux radiatifs

Afin d'évaluer la contribution des particules de suie aux puissance et flux radiatifs dans la chambre de combustion, quatre calculs supplémentaires ont été réalisés :



**FIGURE 9.18 – Champ de puissance radiative moyenne dans le plan médian de la chambre de combustion.** L'écart-type est représenté pour attester de la convergence du calcul de puissance radiative.

- **AG+S** : analogue au calcul complet, sans l'émission des espèces gazeuses,
- **AG+S+AL** : analogue au calcul complet, sans l'émission des espèces gazeuses et des limites,
- **G+AS** : analogue au calcul complet, sans l'émission des particules de suie,
- **S** : analogue au calcul complet, sans les espèces gazeuses.

Les puissances moyennes émise et absorbée en volume dans le domaine, ainsi que par les limites, sont comparées à celles du calcul complet dans le tableau 9.2. L'émission et l'absorption des particules de suie y apparaissent petites devant celles des espèces gazeuses, comme attendu pour les niveaux de fraction volumique calculés. Le cas (AG+S+AL), pour lequel le flux absorbé par les parois latérales est présenté sur la figure 9.20, confirme néanmoins que le rayonnement émis par les suies n'est pas absorbé dans sa totalité par  $H_2O$ ,  $CO_2$  et  $CO$ , les particules contribuent donc bien à l'augmentation, même minime pour la configuration FIRST, de la charge thermique pariétale. Ce flux radiatif, très petit devant celui du aux espèces gazeuses, ne compense toutefois pas l'émission propre des parois (*cf.* Absorption (AG+S) et (S) dans le tableau 9.2) et est négligeable devant le flux convectif.

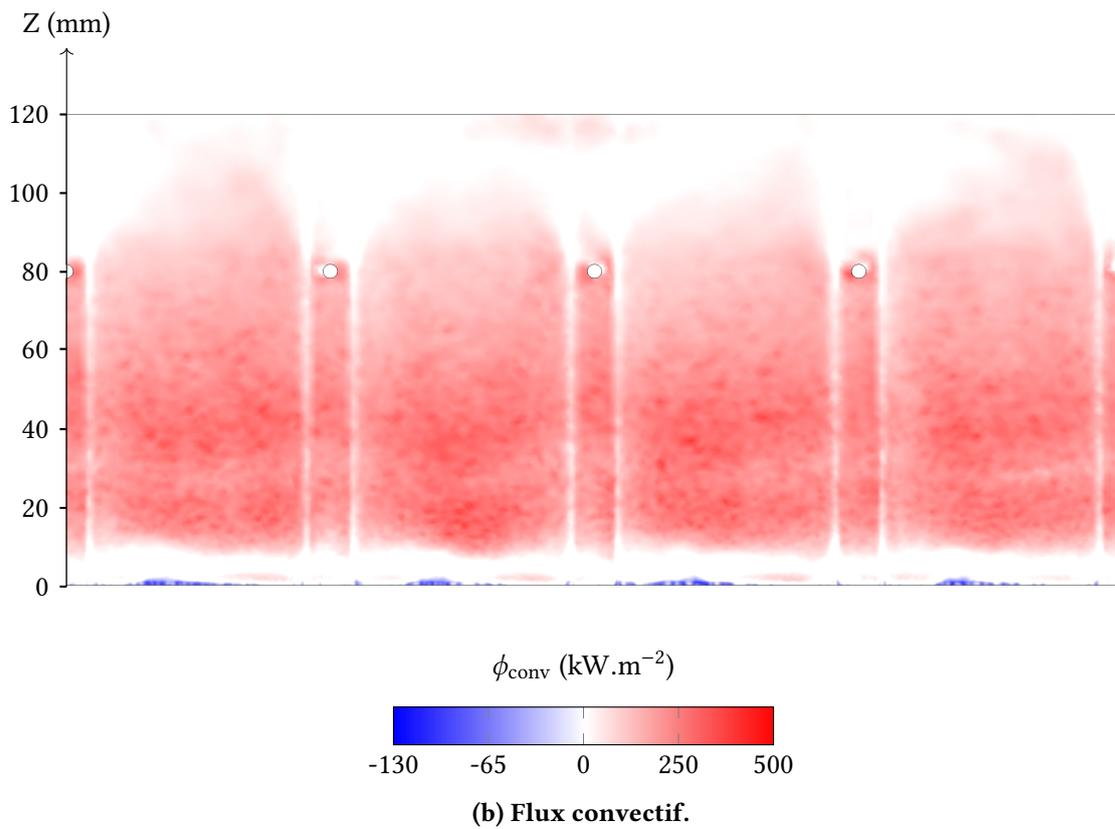
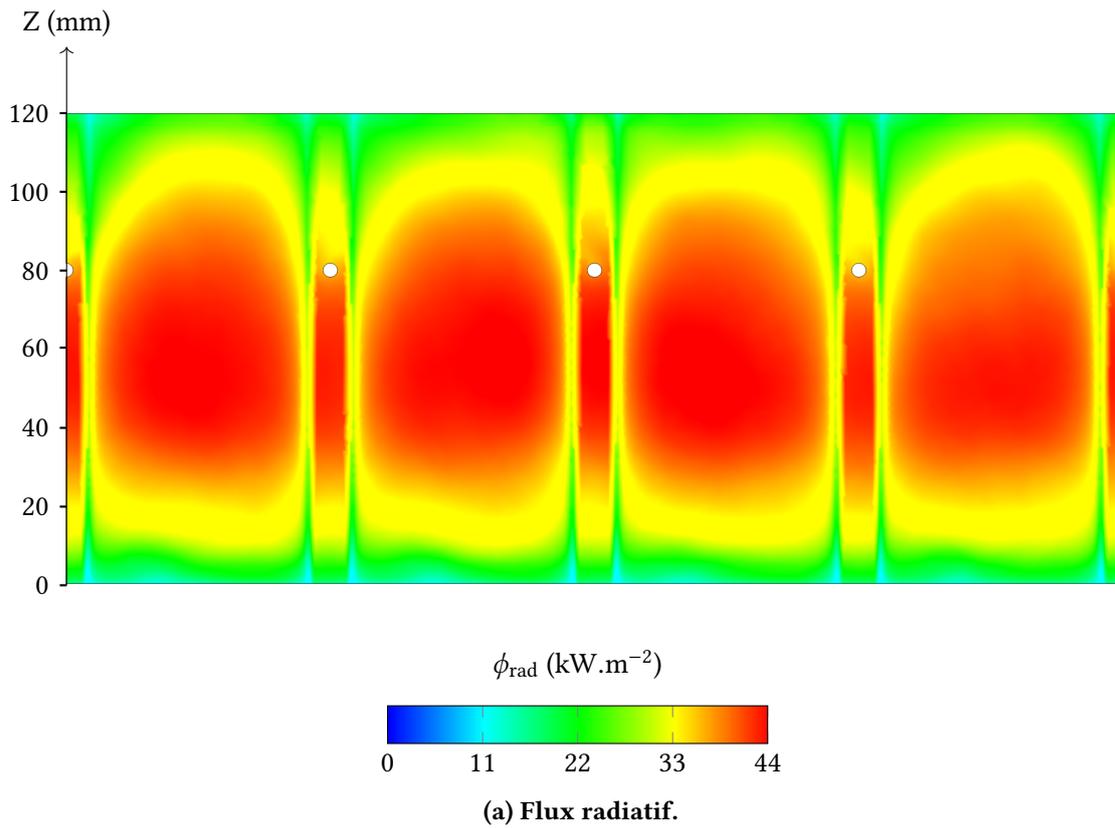


FIGURE 9.19 – Champs de flux radiatif et convectif moyens sur les parois latérales de la chambre de combustion.

On notera que la figure 9.20 révèle les asymétries résiduelles des champs volumiques moyens des phases gazeuse et dispersée, et donc la convergence imparfaite de la simulation déjà évoquée en début de chapitre.

	Milieu (volume)	Parois	Entrées/Sorties
<b>Émission</b>			
Puissance (C) [kW]	4,67	0,704	0,173
Puissance (AG+S) [kW]	0,0462	0,704	0,173
Puissance (AG+S+AL) [kW]	0,0462	0	0
Puissance (G+AS) [kW]	4,62	0,704	0,173
Puissance (S) [kW]	0,0462	0,704	0,173
<b>Absorption</b>			
Puissance (C) [kW]	2,79	2,11	0,621
Puissance (AG+S) [kW]	0,139	0,604	0,177
Puissance (AG+S+AL) [kW]	0,0241	0,0217	0,000172
Puissance (G+AS) [kW]	2,77	2,09	0,620
Puissance (S) [kW]	0,00613	0,730	0,185

TABLE 9.2 – Puissances émise et absorbée en volume et aux limites dans le domaine de calcul pour le calcul complet (C) et les quatre calculs partiels (AG+S), (AG+S+AL), (G+AS), (S).

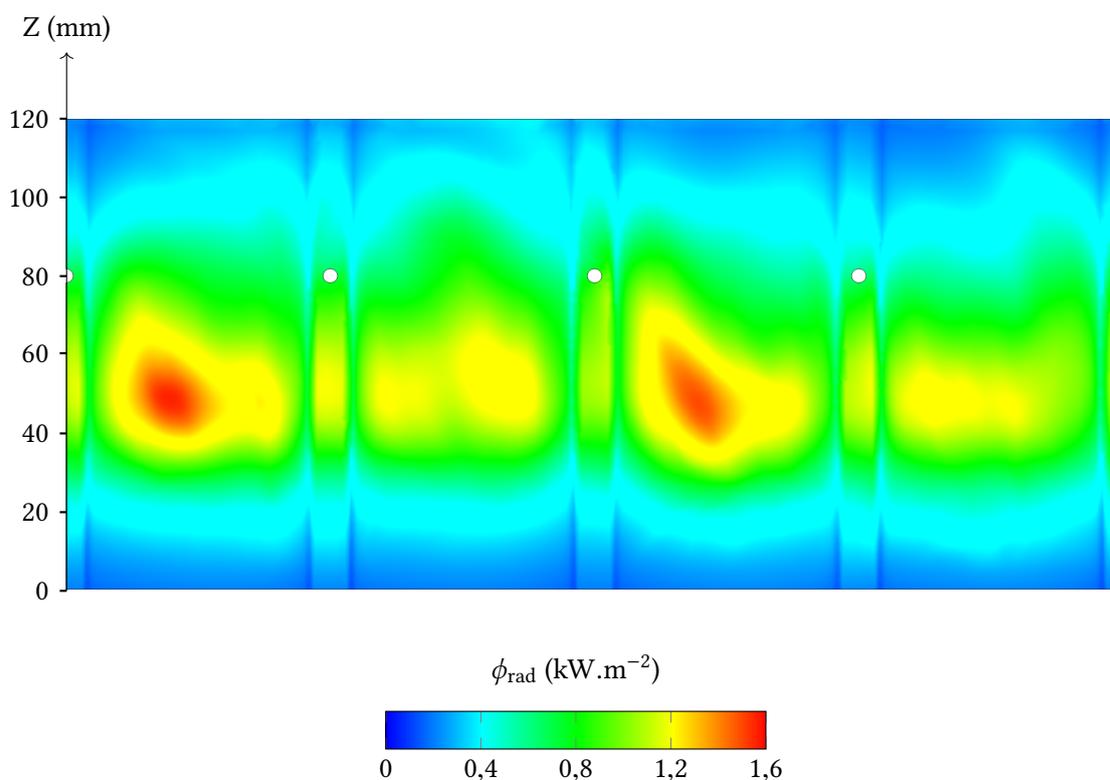


FIGURE 9.20 – Champ de flux moyen absorbé par les parois latérales de la chambre de combustion pour le cas (AG+S+AL).

## Bilan

Dans ce chapitre, on a tout d'abord décrit la structure de l'écoulement et caractérisé la combustion dans la configuration FIRST. On a montré que les champs de vitesse et de température obtenus sont en bon accord avec les mesures expérimentales disponibles. Les écarts constatés sur ces deux grandeurs dans la partie aval de la chambre de combustion sont associées au déraffinement du maillage dans cette région. Le choix de la température de paroi au niveau du fond de chambre conduit par ailleurs à une surestimation de la température dans la zone de recirculation externe identifiée. On a aussi montré que la topologie des champs de radical OH et de PAH sont cohérents avec les mesures LIF.

On a décrit l'évolution des particules de suie, modélisées par l'approche Lagrangienne développée dans la première partie de ce travail. Les niveaux de fraction volumique obtenus sont corrects, avec un facteur expérience/simulation proche de l'unité sur la valeur maximale. Ce facteur est inférieur à 4 pour les pics situés le long des parois latérales de la chambre. On a enfin montré que le rayonnement des suies est négligeable en moyenne devant celui des espèces gazeuses pour cette configuration. Les particules contribuent néanmoins à l'élévation de la charge thermique pariétale, même si l'amplitude de ce phénomène est faible dans le cas présent devant la contribution des espèces gazeuses et le flux convectif.

---

# Conclusion et perspectives

---

L'objectif de ce travail de thèse était de développer une méthode couplée Euler-Lagrange pour la description de la formation et de l'évolution des particules de suie dans le code d'énergétique de l'ONERA, CEDRE. La prédiction des niveaux de suie s'inscrit en effet dans le contexte global de la conception des chambres de combustion aéronautiques, avec un impact sur les émissions polluantes, pour lesquelles les normes internationales – toujours plus sévères – sont en cours d'évolution, et sur les transferts radiatifs aux parois. Ces travaux ont été divisés en deux parties, la première dédiée à l'implantation des méthodes et modèles de formation et d'évolution des particules de suie dans les solveurs eulérien CHARME et lagrangien SPARTE, ainsi qu'à leur application sur des cas-tests 0D et 1D ; la seconde à leur application sur une configuration complexe représentative d'une chambre de combustion aéronautique.

Dans la première partie de ce travail, le modèle de cinétique chimique du solveur CHARME a été étendu au traitement de mécanismes détaillés de nucléation. Un algorithme d'injection de particules a également été implanté dans le solveur SPARTE afin d'assurer le couplage de la phase gazeuse vers la phase dispersée. Les modèles de la littérature mis en place dans ce solveur permettent de décrire l'évolution de particules sphériques par croissance en surface, oxydation et condensation de PAH. Les interactions entre particules sont modélisées selon deux régimes, la coalescence, et la pseudo-agrégation, comme limite à la coalescence. La méthode couplée Euler-Lagrange ainsi développée a été appliquée avec succès à une flamme laminaire de prémélange  $C_2H_4$ /air à trois richesses. La fraction volumique de suie et le diamètre des particules obtenus par la simulation numérique y sont en bon accord avec les mesures expérimentales aux richesses les plus élevées.

La rétroaction de la phase dispersée sur la phase gazeuse a nécessité le développement de méthodes de limitation des sources de masse, portant sur les particules et les espèces avec lesquelles elles interagissent. Ces méthodes assurent la cohérence de l'avance en temps des deux phases dans un calcul LES instationnaire et la conservation stricte de la masse. Une première voie d'amélioration concernerait en revanche le couplage de la phase gazeuse à la phase dispersée. Les termes source liés à la nucléation de particules sont en effet intégrés selon deux méthodes distinctes dans les solveurs CHARME et SPARTE, respectivement implicite et explicite. La conservation stricte de la masse d'un solveur à l'autre, garantie par la définition des termes source, pourrait donc être biaisée. Une deuxième voie d'amélioration est la modélisation des interactions entre particules. La transition de la coalescence à la pseudo-agrégation, liée à l'âge des partenaires de collision, a été associée à leur diamètre selon un critère constant. Il serait possible d'affiner ce dernier en fonction du combustible, de la richesse, de la température et de la durée de vie des particules. Un critère sur leur temps de résidence à haute température pourrait aussi être envisagé, la carbonisation des jeunes particules en dépendant. Une validation de la méthode utilisée dans ce travail sur d'autres configurations avec un combustible différent de  $C_2H_4$  est aussi indispensable. Le modèle d'interaction entre particules a par ailleurs été étendu en fin de thèse à l'agrégation, ce qui permet de décrire la formation d'agrégats de particules sphériques. Son application sur un cas-test 0D a

montré que sa prise en compte avait peu d'impact sur l'évolution des particules composant les agrégats et la rétroaction de la phase dispersée sur la phase gazeuse. Néanmoins, la description des agrégats est importante pour la caractérisation des émissions polluantes et la modélisation du rayonnement des suies. Le suivi des agrégats pourrait aussi nécessiter une modélisation plus poussée de l'étape de transport avec prise en compte de la traînée. Une troisième voie d'amélioration, déjà mentionnée, concerne l'algorithme de réduction de population développé. Cet algorithme, mis en place pour limiter le coût CPU et le temps de restitution des simulations – croissant avec la taille de la population de particules – permet de réduire périodiquement le nombre de particules transportées tout en conservant les premiers moments de leur distribution en taille. Le contrôle de sa convergence pourrait être renforcé, et son utilisation étendue aux agrégats de particules.

Dans la deuxième partie de ce travail, la méthode couplée Euler-Lagrange a été appliquée à la configuration FIRST du DLR. Cette configuration, qui utilise une chambre de combustion  $C_2H_4$ /air, est représentative de la technologie RQL des chambres de combustion aéronautiques. Elle a par ailleurs été largement instrumentée afin de constituer une base de données de validation de modèles de suie. Une simulation LES a été menée à la richesse 1,2 à une pression intermédiaire de 3 bar. Pour réduire le temps de restitution, l'approximation de l'état quasi-stationnaire relative à la chimie de la combustion, implantée dans le code CEDRE pour ces travaux, a été mise en œuvre pour un ensemble d'espèces sélectionnées dans le mécanisme de nucléation. La comparaison des profils de vitesse et de température moyennes et RMS aux mesures expérimentales PIV-Soc, PIV-FoV et CARS montre que la topologie de l'écoulement et la structure de la flamme sont prédites de façon satisfaisante. Les écarts aux mesures constatés sur les niveaux de fraction volumique de suie sont également raisonnables, avec un facteur expérience/simulation proche de 1 sur la valeur maximale et inférieur à 4 sur les pics le long des parois latérales de la chambre. L'approche lagrangienne a par ailleurs l'avantage de donner directement accès à la taille des particules dans chaque cellule, ainsi qu'à leur distribution en taille, ce qui a permis de vérifier les corrélations entre leur évolution et les termes source associés aux phénomènes de croissance ou d'oxydation des sphérules. Les mesures expérimentales disponibles ne permettent pas de caractériser finement l'évolution des particules. Néanmoins, l'accord entre simulation numérique et expérience sur les champs PLIF de radical OH et de PAH est un bon indicateur qualitatif de la justesse des mécanismes de nucléation et d'oxydation. Pour compléter la simulation LES instationnaire, des calculs de transfert radiatifs ont été menés sur les champs moyens des grandeurs des phases gazeuse et dispersée. Ces calculs ont permis de montrer que l'émission du gaz contribue à exercer une charge thermique pariétale, dans une moindre mesure cependant que le flux convectif. Par ailleurs, les suies dont la fraction volumique est de l'ordre de  $1 \times 10^{-2}$  ppm en moyenne ne représentent pour la configuration FIRST qu'une faible part du flux radiatif sur les parois latérales de la chambre.

Pour aller plus loin sur la configuration FIRST, plusieurs voies d'amélioration sont à nouveau possibles. La première est le raffinement du maillage dans la partie aval de la chambre de combustion afin d'améliorer la prédiction des champs aérothermiques au sommet de la zone de recirculation interne et de réduire les écarts à l'expérience constatés dans cette région. Une deuxième voie serait la modélisation de l'interaction chimie-turbulence, non prise en compte dans ce travail, qui nécessite de nouveaux développements dans le code CEDRE. Une troisième voie d'amélioration serait d'augmenter le nombre de particules numériques dans le domaine de calcul – limité à 64 par cellule – pour confirmer la capacité de l'approche lagrangienne à décrire l'évolution de la population de particules de suie. Un tel exercice a été mené en 1D mais n'a pas pu être conduit dans ce travail sur la configuration FIRST, car trop coûteux en temps de restitution. Une dernière voie d'amélioration serait de prendre en compte l'agrégation des particules sphériques pour caractériser les émissions polluantes en sortie de chambre. Cette simulation pourrait être comparée avec la simulation sans agrégats. Un calcul de transferts radiatifs pourrait aussi être conduit avec une modélisation adaptée du coefficient d'absorption des agrégats et comparé aux calculs présentés dans ce travail. Un calcul avec couplage complet phase gazeuse-phase dispersée-rayonnement serait un objectif à plus long terme.

Pour finir, il est indispensable de poursuivre la validation de la méthode couplée Euler-Lagrange

---

en faisant varier les points de fonctionnement des configurations déjà simulées et en glissant vers des hydrocarbures lourds jusqu'au kérosène grâce à d'autres configurations.



---

## **Annexe A**

# **Résultats complémentaires sur la configuration de Xu et al.**

---

On trouvera dans cette annexe l'article soumis à *Energy* relatif à la validation de la méthode couplée Euler-Lagrange sur la configuration de Xu et al. (*cf.* chapitre 6).

# Hybrid Eulerian-Lagrangian Method For Soot Modelling Applied To Ethylene-Air Premixed Flames

Nicolas Dellinger<sup>a,\*</sup>, Nicolas Bertier<sup>b</sup>, Francis Dupoirieux<sup>c</sup>, Guillaume Legros<sup>d</sup>

<sup>a</sup>*Department MultiPhysics for Energetics (DMPE), ONERA, Université Paris Saclay, F-92322 Châtillon, France*

<sup>b</sup>*Department MultiPhysics for Energetics (DMPE), ONERA, Université Paris Saclay, F-92322 Châtillon, France*

<sup>c</sup>*Scientific Directorate, ONERA, Université Paris Saclay, F-91123 Palaiseau, France*

<sup>d</sup>*Sorbonne Université, Centre National de la Recherche Scientifique, UMR 7190, Institut Jean le Rond d'Alembert, F-75005 Paris, France*

---

## Abstract

Soot formation has become an important issue in the design of gas turbine combustors due to its environmental impact and its contribution to radiative heat transfer in the combustion chamber. However, efficient and accurate prediction of soot particles formation, growth, oxidation and interaction in gas turbine combustors is still an open field in computational fluid dynamics. The present approach proposes to combine a reduced gas-phase chemistry, a sectional model for polycyclic aromatic hydrocarbons, and a Lagrangian description of soot particles dynamics. The Lagrangian description has been chosen for its ability to simulate the evolution of the particle size distribution. A numerical procedure is proposed to minimise its CPU cost. This approach was successfully applied to the simulation of steady laminar premixed ethylene-air flames at three fuel equivalence ratios, which constitutes a prerequisite towards its use in an aeronautical combustion chamber.

*Keywords:* CFD, Combustion, PAH, Sectional model, Soot, Lagrangian description

---

## 1. Introduction

Soot particles created in gas turbine combustors contribute to air pollution and enhance the radiative transfer in the combustion chamber, locally increasing the gas temperature and the thermal load on the chamber walls and turbine blades. The production of other pollutants, such as nitrogen oxides which are particularly sensitive to temperature, might be influenced too [1]. As a consequence of both concerns, efficient and accurate modelling of soot formation and evolution is an important issue in the design of aircraft engines.

Soot models are generally classified in three categories. Empirical models use correlations from experimental measurements to compute the soot volume fraction and number density, for instance as a function of the fuel concentration [2], the concentration of an intermediate species [3], or a location in the flame [4]. Suitable

---

\*Corresponding author

*Email address:* nicolas.dellinger@onera.fr (Nicolas Dellinger)

with global reaction schemes, and thus allowing the calculation of complex configurations, these models are however weakly predictive over wide ranges of parameters.

Semi-empirical models, as the Leung one [5], are based on a simplified description of soot nucleation, coagulation, growth, and oxidation kinetics. Source terms for the soot volume fraction and number density are calculated from kinetic constants, determined from experimental measurements, or derived from a population balance equation for coagulation. More predictive, these models generally require the concentration of acetylene, as light soot precursor, computed by means of expensive reaction mechanisms or cheaper tabulated chemistry [6]. Application of semi-empirical models to the simulation of industrial burners is therefore usually based on the tabulation approach.

Detailed models, of particular interest for the present study, include a complex description of both soot chemical kinetics and particles dynamics. Reactions for surface growth by addition of acetylene and condensation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), as well as oxidation by  $O_2$  and  $OH$  are generally included in the reaction mechanism [7]. Following the requirement to correctly predict these species and accurately describe soot nucleation, a large number of intermediate species, from benzene up to large PAHs, has to be added to the kinetic scheme, resulting in mechanisms of tens of species and hundreds of reactions [8]. Particles dynamics, which includes soot particles evolution via the aforementioned chemical processes associated with coalescence and aggregation, can be modelled using sectional methods [9, 10, 11] or methods of moments [12, 13]. Unlike empirical and semi-empirical models, the two approaches account for both the polydispersion in size and the non-sphericity of the particles, which can be described as fractal aggregates [10, 14, 15, 16, 17]. Methods of moments, for which a restricted set of moments can be sufficient to characterize the soot particles population, are yet preferable to limit the CPU cost in industrial applications, sectionals methods requiring a high number of sections and, eventually, variables per section. Because of the large chemical mechanism required to predict the evolution of the soot precursors and the need to properly describe the particles dynamics, detailed soot models can be prohibitively expensive for the computation of aircraft engines combustion chambers. Tabulated chemistry [18, 19, 20] might be a solution to limit the number of transported variables relative to the fuel combustion. However, the modelling of heat losses as well as the consideration of combustion regimes and multiphase flow effects increase the complexity and thus the computational cost of such approaches. Also, the extension of tabulated chemistry to species having long evolution time scales, such as  $NO$  or soot, is an issue [21]. Alternatively, sectional methods can be used to characterize PAH growth [10, 22, 23] and combined with a reduced chemical mechanism for lighter species [24, 25]. The present study follows the latter strategy and focuses on the Lagrangian description of soot particles as a dispersed solid phase. The Lagrangian tracking method is a substitute to sectional methods and methods of moments for computing particle dynamics. It gives the possibility to follow a numerical particle continuously along its trajectory, and to monitor its individual interaction with both the gas phase and the other particles. No classes or sections of particles have here to be prescribed, and the calculation of the particle size distribution, of first interest for soot applications, is straightforward. Nevertheless, the computational cost could be a limiting factor, the statistical convergence of a Lagrangian method being inversely proportional to the square root of the number of particles.

The Lagrangian tracking approach has been recently proposed by Gallen et al. [26] and Ong et al. [27]. While acetylene is used in these two studies, the soot particles are nucleated from PAH molecules and radicals in the present one. More detailed soot evolution models, which allow the two-way coupling of the gaseous and solid phases, are additionally used. An innovative algorithm to control the number of tracked particles is finally introduced in order to keep the computational cost moderate.

The model was implemented in the aerothermochemistry CEDRE code, developed at ONERA [28]. The approach being unusual compared to more common Eulerian methods, the subsequent simulations must be validated by comparison with academic flame configurations. While numerical simulations of steady two-dimensional laminar sooting flames have already been conducted with some success [29], the discrimination between failures of the soot model and of the flow description that may be responsible for the discrepancies between experimental measurements and numerical fields especially remains an issue. For that reason, the present study is specifically focused on the validation based on steady one-dimensional laminar ethylene-air flames at three fuel equivalence ratios.

## 2. Gas phase models and methods

Through the coupling of dedicated solvers, the CEDRE code allows the simulation of multiphase compressible reacting flows on unstructured meshes. In particular, the conservation equations for the reacting gas phase in the present study are resolved through the finite-volume Eulerian solver CHARME, able to deal with future targeted applications to industrial configurations.

### 2.1. Conservation equations

For compressible laminar reacting flows, the mass, momentum, and energy conservation equations write:

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho Y_k \mathbf{V}) = -\nabla \cdot \mathbf{J}_k + \dot{\omega}_k + S_k^d, \quad (1)$$

Mass

$$\frac{\partial \rho \mathbf{V}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{V} \otimes \mathbf{V}) = \nabla \cdot (\boldsymbol{\tau} - p \mathbf{I}) + \rho \mathbf{g} + \mathbf{S}_q^d, \quad (2)$$

Momentum

$$\frac{\partial \rho e_t}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho e_t \mathbf{V}) = -\nabla \cdot \mathbf{J}_{e_t} + \nabla \cdot [(\boldsymbol{\tau} - p \mathbf{I}) \mathbf{V}] + \rho \mathbf{g} \cdot \mathbf{V} + S_{e_t}^d + S_{e_t}^{exp} \quad (3)$$

Energy

where  $t$  is the time,  $\rho$  the density of the ideal gas mixture, composed of  $N_s$  species,  $Y_k$  the mass fraction of species  $k$ ,  $p$  the pressure,  $\mathbf{V}$  the velocity vector,  $\mathbf{g}$  the gravity vector, and  $\mathbf{I}$  the identity matrix.

#### *Mass conservation equation* (1)

$\mathbf{J}_k$  is the molecular diffusion flux of species  $k$ , calculated using Hirschfelder and Curtiss' approximation [30] as:

$$\mathbf{J}_k = \rho \mathcal{V}_k Y_k = -\rho \left( D_k \frac{\mathcal{M}_k}{\mathcal{M}} \nabla X_k + \mathbf{V}_c Y_k \right), \quad (4)$$

where  $\mathcal{V}_k$ ,  $\mathcal{M}_k$  and  $X_k$  are respectively the diffusion velocity, the molecular weight and the mole fraction of species  $k$ , and  $\mathcal{M}$  the molecular weight of the mixture.  $D_k$  is the diffusion coefficient of species  $k$  in the mixture, computed by equation (5) as a function of the binary diffusion coefficients  $\mathcal{D}_{jk}$  of each species  $j$  in species  $k$ .

$$D_k = (1 - Y_k) \left( \sum_{j \neq k} \frac{X_j}{\mathcal{D}_{jk}} \right)^{-1} \quad (5)$$

$\mathbf{V}_c$  is a correction velocity, given by equation (6), ensuring global mass conservation.

$$\mathbf{V}_c = \sum_{i=1}^{N_s} D_i \frac{\mathcal{M}_i}{\mathcal{M}} \nabla X_i \quad (6)$$

$\dot{\omega}_k$  is the chemical source term of species  $k$ , calculated from the reaction mechanism [31].  $S_k^d$ , the feedback source term of the dispersed phase – i.e. the soot particles – on species  $k$ , will be discussed in subsection 4.3.

#### **Momentum conservation equation (2)**

$\boldsymbol{\tau}$  is the viscous tensor, calculated for Newtonian fluids considered in the present study as:

$$\boldsymbol{\tau} = \mu \left[ \nabla \mathbf{V} + (\nabla \mathbf{V})^T \right] + \left( \kappa - \frac{2}{3} \mu \right) (\nabla \cdot \mathbf{V}) \mathbf{I}, \quad (7)$$

where  $\mu$  is the dynamic viscosity of the mixture, defined as the arithmetic mean of the species viscosities  $\mu_k$  weighted by the species mass fractions, and  $\kappa$  the bulk viscosity, commonly assumed to be negligible.

$\mathbf{S}_q^d$ , the feedback source term of the dispersed phase, will be discussed in section 3.

#### **Energy conservation equation (3)**

The energy conservation equation is written using the total energy, defined by equation (8), where  $T$  is the temperature,  $T_0$  the reference temperature,  $h_{f_k}^0$  the specific enthalpy of formation of species  $k$  at  $T_0$ ,  $c_v$  the specific heat capacity at constant volume of the mixture and  $\mathcal{R}$  the gas constant:

$$e_t = \sum_{k=1}^{N_s} Y_k h_{f_k}^0 + \int_{T_0}^T c_v dT - \frac{\mathcal{R}T_0}{\mathcal{M}} + \frac{1}{2} \mathbf{V} \cdot \mathbf{V}. \quad (8)$$

$\mathbf{J}_{e_t}$  is the heat diffusion flux, computed under the assumption of negligible Dufour effect as:

$$\mathbf{J}_{e_t} = -\lambda \nabla T + \sum_{k=1}^{N_s} h_{f_k}^0 \mathbf{J}_k, \quad (9)$$

where  $\lambda$  is the thermal conductivity of the mixture.  $\lambda/\mu$  is defined as the arithmetic mean of the ratios  $\lambda_k/\mu_k$  weighted by the species mass fractions, with  $\lambda_k$  the thermal conductivity of species  $k$ .

$S_{e_t}^d$ , the feedback source term of the dispersed phase, will be discussed in section 3. Radiative heat transfers are not taken into account in equation (3), because, in the validation cases hereinafter, experimental temperature profiles are imposed through the corrective source term  $S_{e_t}^{exp}$  [6, 32]. It allows to make the calculation of the targeted burner-stabilised flames easier.

## 2.2. Numerical methods

A second order MUSCL (Monotonic Upwind Scheme for Conservation Laws) type scheme is used for space discretisation and combined with a HLLC (Harten-Lax-van Leer-Contact) scheme for hyperbolic fluxes. A second order Gear implicit scheme associated with a GMRES method for the resolution of the linear system is applied for time integration.

## 3. Lagrangian dispersed phase solver

Soot particles dynamics is described in the present study through the newly developed Lagrangian module SPARTACCUS of the CEDRE code.

### 3.1. Preliminary hypothesis

Soot particles, whose diameter is in the range 1-80 nm hereinafter, are supposed to behave as tracers embedded in the gas flow. Their velocity is therefore taken equal to the gas velocity and their temperature, assumed uniform, to the gas temperature. Soot particles are furthermore modelled as solid spheres, with a constant density  $\rho_s$ .

Two collision regimes should be considered, coalescence and aggregation, depending on the age of the particles. Young soot particles, considered as liquid-like spheres [33], are indeed deformable and will preferably coalesce with their collision partner to form a larger spherical particle. Older carbonised particles, on the contrary, are the elementary solid bricks for the building of soot aggregates. The description of the latter is however not of primary interest for the comparison of numerical simulations and experimental measurements in the present study. Also computationally<sup>1</sup> challenging, it will have to be addressed separately in the future. Aggregation is here replaced by “non-coalescence” to bound coalescence within its physical domain. To this end, the ageing of the soot particles is assumed to depend on a single parameter, their diameter, and a critical diameter  $d_{crit}$  is introduced. Coalescence only occurs if one of the collision partners has a diameter smaller than  $d_{crit}$ . If not, “non-coalescence” takes place and the kinematic parameters of the collisions partners are equalised by analogy to aggregation.

The present formulation allows to directly compare the particle diameter to the primary particle diameter measured by Xu et al. [32] as part of the validation process in section 5. Comparison of the soot volume fraction – the quantity usually available for complex configurations – is also straightforward, since not modified through aggregation at constant volume, at least as a first-order approximation. For the same reason, the soot radiative heat transfer might additionally be modelled as a function of the volume fraction [6]. Note that, in a flame with a mean temperature of 1500 K as in the following, the peak wavelength  $\lambda_M$  involved in the radiative heat transfer would be of the order of  $2 \mu\text{m}$ . This means that the size parameter  $\pi d/\lambda_M$  of a particle, with  $d$  its diameter, would be much less than one and implies that light absorption would exceed light scattering. The sensitivity of the radiative heat transfer to the shape of the soot aggregates – which are not considered – would therefore not be of first order.

---

<sup>1</sup>In terms of code architecture

### 3.2. Numerical methods

The particle number density function, governed by the Williams kinetic equation [34], is discretised in the Lagrangian dispersed phase solver by a finite number of tracked Dirac distributions or numerical particles, each having a numerical weight  $w_p$ . A numerical particle  $p$  thereby represents  $w_p$  physical particles with identical state vectors composed of the position  $\mathbf{x}_p$ , the velocity  $\mathbf{V}_p$ , the temperature  $T_p$  and the radius  $r_p$ . For soot applications, the state vector of the numerical particles is updated at each iteration of duration  $\Delta t$  through a collision and a transport step, detailed below.

#### *Collision step*

Collisions are described through a four-step algorithm designed to reproduce the real physics of collisions from the tracking of numerical particles, the number of which being necessarily limited compared to the real number of physical particles. The underlying theory of the algorithm is out of the scope of this study and the interested reader is referred to the original work of Villedieu and Hylkema [35, 36, 37] for details. At each time step, for each cell  $c$  assumed to contain  $N_c$  numerical particles, the algorithm includes the following actions:

1. Randomly choose  $N_c/2$  pairs of numerical particles if  $N_c$  is even, and  $(N_c - 1)/2$  pairs of numerical particles otherwise. The particle with the highest numerical weight in a pair will be identified below with the subscript 1 and the other one with the subscript 2.
2. Compute the quantity  $\nu_{\mathcal{P}}$  for each pair  $\mathcal{P}$  by equation (10) as a function of the highest numerical weight  $w_1$ :

$$\nu_{\mathcal{P}} = (N_c - 1) \frac{w_1}{\mathcal{V}_c} \beta_{12} \Delta t, \quad (10)$$

where  $\mathcal{V}_c$  is the volume of cell  $c$  and  $\beta_{12}$ , discussed in subsection 4.3, is the collision frequency of a physical particle in the numerical particle 1 with any physical particle in the numerical particle 2.  $N_c - 1$  is a factor compensating for the selection of only  $N_c/2$  pairs among the  $N_c(N_c - 1)/2$  possible ones.

For a given pair,  $\nu_{\mathcal{P}}$  represents the mean number of collisions between a physical particle in the numerical particle 1 and any physical particle in the numerical particle 2 over  $N_c - 1$  time steps, the pair being selected every  $N_c - 1$  time step on average, as reported by Murrone and Villedieu [38]. For the  $N_c$  numerical particles, its value for each pair determines the proportion of pairs, among the  $N_c/2$  ones, for which the numerical particles have to collide during the time step to reproduce the real effects of collisions between all the physical particles.

3. Randomly choose a real number  $s_{\mathcal{P}} \in [0, 1]$  for each pair  $\mathcal{P}$ .
4. Update the state vector of the particles for each colliding pair, i.e. each pair satisfying  $s_{\mathcal{P}} \leq \nu_{\mathcal{P}}$ .

Note that, by construction, at most one collision per time step and pair is accounted for in the algorithm, so that  $\Delta t$  is chosen small enough in section 5 to ensure  $\nu_{\mathcal{P}} \leq 1$  for all pairs.

According to the collision regime, the state vectors of particles 1 and 2 are modified as follows:

- For coalescence, the total volume of the particles is conserved. The numerical weight of particle 1 is therefore set to  $w_1 - w_2$  and the new state vector of particle 2 is computed through the system of equations (11):

$$\begin{cases} \mathbf{x}_2^{coa} = a_1 \mathbf{x}_1 + a_2 \mathbf{x}_2, \\ \mathbf{V}_2^{coa} = a_1 \mathbf{V}_1 + a_2 \mathbf{V}_2, \\ T_2^{coa} = a_1 T_1 + a_2 T_2, \\ r_2^{coa} = \left( \frac{3\mathcal{V}^{coa}}{4\pi} \right)^{1/3}, \end{cases} \quad (11)$$

where  $a_1$  and  $a_2$  are the ratios of the volumes  $\mathcal{V}_1$  and  $\mathcal{V}_2$  of particles 1 and 2, respectively, to the one of the coalesced particle  $\mathcal{V}^{coa} = \mathcal{V}_1 + \mathcal{V}_2$ . It means that the result of the coalescence process is a spherical particle containing all the mass of the collision partners.

Note that, if both particles have originally the same numerical weight, their state vectors are taken equal to the one of the coalesced particle, and their numerical weights are halved.

- For “non-coalescence”, the numerical weight of particle 1 is set to  $w_2$ , and its position and velocity are taken equal to the one of particle 2. It means that the result of the non-coalescence process is a set of spherical particles located at the same point with the same velocity, as if they were stuck to each other by a single contact point by analogy to aggregation.

Note that, if both particles have initially different numerical weights, a new particle, with a numerical weight equal to  $w_1 - w_2$  and a state vector identical to the one of particle 1, has to be created first.

### ***Transport step***

The transport step describes the evolution, due to interactions with the gas phase, of the particles velocity, position and temperature on the one side, which is straightforward for tracers, and of the particles radius through chemical processes on the other side. At each time step, the new state vector – with superscript  $n + 1$  – of a numerical particle  $p$  located in cell  $c$  is calculated as a function of the former one – with superscript  $n$  – through an explicit scheme as follows:

$$\begin{cases} \mathbf{V}_p^{n+1} = \mathbf{V}_c^n, \\ \mathbf{x}_p^{n+1} = \mathbf{x}_p^n + \mathbf{V}_c^n \Delta t, \\ T_p^{n+1} = T_c^n, \\ m_p^{n+1} = m_p^n + \dot{\omega}_{m,p}^n \mathcal{V}_c \Delta t, \end{cases} \quad (12)$$

where  $\mathbf{V}_c$  and  $T_c$  are the gas velocity and temperature in cell  $c$ , and  $m_p$  the mass of the particle. The mass equation replaces here the radius equation for the sake of clarity, the new radius being inferred from equation 13 for spherical particles. The mass source term  $\dot{\omega}_m$  will be discussed in subsection 4.3.

$$r_p^{n+1} = \sqrt[3]{\frac{3m_p^{n+1}}{4\pi\rho_s}} \quad (13)$$

### Optimisation

To reduce the computational cost of the Lagrangian solver, a quadtree-like procedure [39] grouping particles by radius  $r$  and residence time  $t$  – defined as the time required by a particle to leave the cell where it is located – is applied. Its goal is to identify and suppress, in each cell, the numerical particles carrying redundant informations using a dispersion criterion in the two-dimensional  $(r, t)$  - space, of primary interest here since the evolution of a particle in a cell is driven – among other parameters (cf. 4.3) – by its size and its interaction time with both the gas phase and the other particles.

Every  $K$  time steps, if the number of numerical particles  $N_c$  in cell  $c$  is higher than a constant  $N$ , the procedure is initiated by defining the boundaries of the  $(r, t)$ -space in cell  $c$  from the local population of particles. The redundant ones are then identified and suppressed by building a tree as follows:

1. The  $(r, t)$ -space is divided in four symmetrical subspaces  $\mathcal{S}_{i=1..4}$  and each particle is associated to the appropriate one as shown in Fig. 1. The dispersion over the particles  $\sigma_i$  in each non-empty subspace  $\mathcal{S}_i$  is computed as:

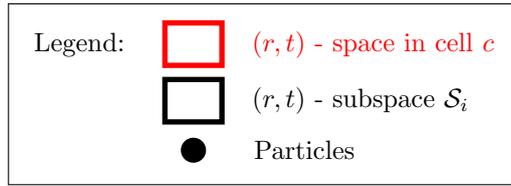
$$\sigma_i = \sqrt{\sum_{\varphi} \left[ \frac{\beta_{i,\varphi}}{\|\beta_i\|} \right]^2 \cdot \left[ \frac{\Delta\varphi_i^p}{\bar{\varphi}_c} \right]^2}, \quad (14)$$

where  $\varphi$  is successively  $r$  and  $t$ .  $\Delta\varphi_i^p$  is the effective amplitude of the variable  $\varphi$  over the particles in  $\mathcal{S}_i$ ,  $\bar{\varphi}_c$  the arithmetic mean of its extrema in cell  $c$  and  $\beta_i$  the stretching vector of  $\mathcal{S}_i$ . The components of  $\beta_i$  – indexed by the variable name  $\varphi$  – are :

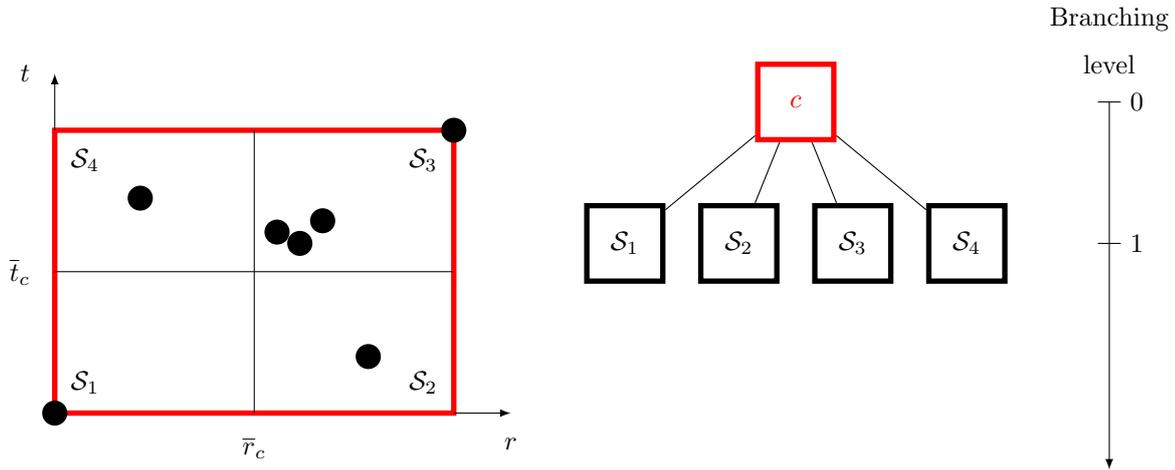
$$\beta_{i,\varphi} = \left[ \max \left( \frac{\Delta r_i}{\bar{r}_c}, \frac{\Delta t_i}{\bar{t}_c} \right) \right] \cdot \left[ \frac{\Delta\varphi_i}{\bar{\varphi}_c} \right]^{-1}, \quad (15)$$

with  $\Delta\varphi_i$  the maximum amplitude of the variable  $\varphi$  in  $\mathcal{S}_i$ .  $\sigma_i$  is normalised by the reference dispersion over the particles in cell  $c$ , so that the obtained dispersion  $\bar{\sigma}_i$  is a strictly decreasing function of the tree branching level, accounting for both the stretching of the space ( $\beta_i$ ) and the difference in magnitude of its two dimensions ( $\bar{\varphi}_c$ ).

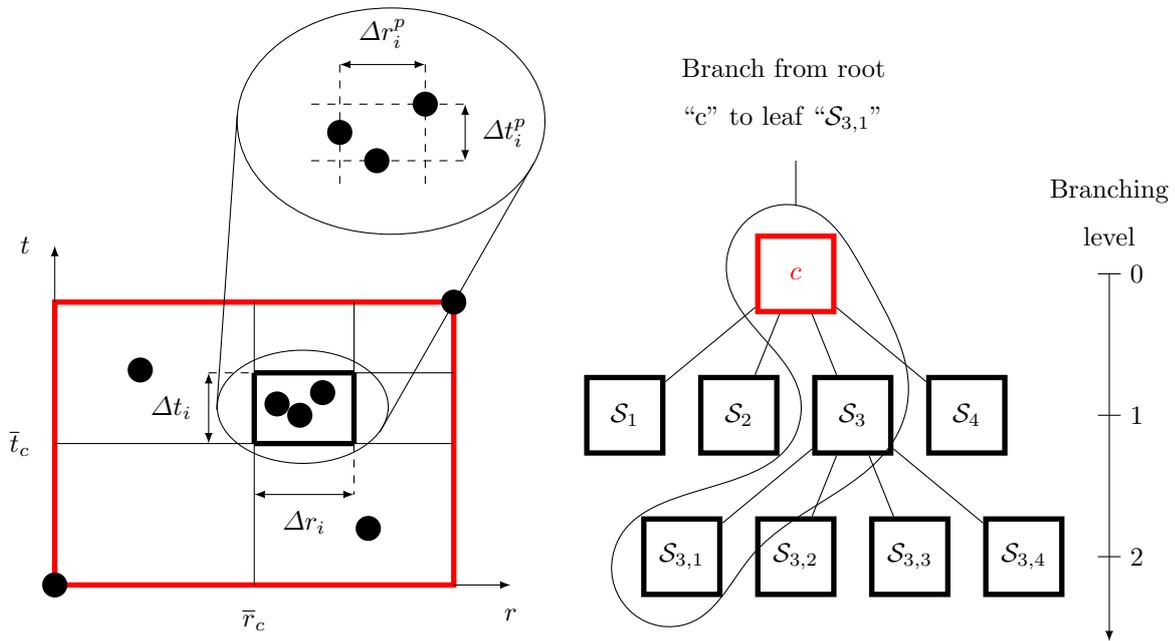
2. The division procedure is repeated for all non-empty subspaces  $\mathcal{S}_i$  at the maximum tree branching level, as shown in Fig. 1, only if these two conditions are satisfied:
  - C1.** The first condition, based on the total number of non-empty subspaces at the end of a branch  $\tilde{N}$ , is global:  $\tilde{N}$ , which represents the number of non-redundant numerical particles, has to be less than  $N$ . Note that the procedure stops if  $\tilde{N} > N$  and returns to the previous maximum tree branching level to recursively suppress the descendants of the subspace with the lowest dispersion until  $\tilde{N} \leq N$ .
  - C2.** The second condition, based on the dispersion  $\bar{\sigma}_i$ , is local:  $\bar{\sigma}_i$  has to be higher than a given threshold, as low as 1% in the present study. Otherwise, the particles in  $\mathcal{S}_i$  are considered to carry redundant informations, so that  $\mathcal{S}_i$  does not need to be further divided.
3. The particles in each non-empty subspace  $\mathcal{S}_i$  located at the end of a branch are replaced by a mean



First pass of the reduction procedure: Maximum tree branching level = 1



Second pass of the reduction procedure: Maximum tree branching level = 2



Third pass of the reduction procedure...

Figure 1: Illustration of the quadtree-procedure in the  $(r, t)$  - space of a cell  $c$ . Mesh-like view on the left, tree-like view on the right.

particle  $\tilde{p}_i$  ensuring surface, volume, momentum and enthalpy conservation:

$$\begin{cases} \tilde{\theta}_i = \left[ \sum_{S_i} w_p r_p^3 \theta_p \right] \cdot \left[ \sum_{S_i} w_p r_p^3 \right]^{-1}, \\ \tilde{r}_i = \left[ \sum_{S_i} w_p r_p^3 \right] \cdot \left[ \sum_{S_i} w_p r_p^2 \right]^{-1}, \\ \tilde{w}_i = \left[ \sum_{S_i} w_p r_p^2 \right]^3 \cdot \left[ \sum_{S_i} w_p r_p^3 \right]^{-2}, \end{cases} \quad (16)$$

where  $\theta$  is successively the position, the velocity and the temperature.

In the present procedure, the sum of the particles volumes and the sum of the particles surfaces are conserved at the expense of their number, the reactive surface being of particular interest for the coupling with the gas phase. It is however worth noting that the conservation of all quantities is achieved when  $\bar{\sigma}_i$  tends towards zero, namely when the maximum number of particles per cell  $N$  is sufficiently high. The impact of  $N$  on the particle size distribution will therefore be discussed in subsection 5.3.2. The particles in a cell are furthermore assumed to have close enough temperatures – even though particles transported from a neighbouring cell might introduce some discrepancies – so that their specific heat capacity is considered identical over the range of particle temperatures. The latter hypothesis allows to compute the temperature of each mean particle without the use of an iterative variable change.

### 3.3. Momentum and energy feedback source terms

For each time step  $\Delta t$  and grid cell  $c$ ,  $\mathbf{S}_{q,c}^d$  and  $S_{e_t,c}^d$  are calculated as:

$$\mathbf{S}_{q,c}^d = -\frac{1}{\mathcal{V}_c \Delta t} \sum_{p \in \mathcal{P}_c(t)} w_p \int_t^{t+\Delta t} \underbrace{\left[ \frac{d(m_p \mathbf{V}_p)}{dt} \right]}_{\text{Variation of the particle momentum}} dt, \quad (17)$$

$$S_{e_t,c}^d = -\frac{1}{\mathcal{V}_c \Delta t} \sum_{p \in \mathcal{P}_c(t)} w_p \int_t^{t+\Delta t} \left[ \underbrace{\frac{1}{2} \frac{d(m_p \mathbf{V}_p^2)}{dt}}_{\text{Variation of the particle kinetic energy}} + \underbrace{m_p c_p \frac{dT_p}{dt}}_{\substack{\text{Variation of the} \\ \text{particle thermal energy}}} \right] dt, \quad (18)$$

where  $\mathcal{P}_c(t)$  is the set of particles located in cell  $c$  at time  $t$  and  $c_p$  the specific heat capacity of particle  $p$ . Note that, even if the velocity and temperature of a particle are set to the ones of the gas phase at the transport step, their variations are to be known for the computation of the feedback source terms. Hence, both variables are modified during the collision and population reduction steps.

## 4. Modelling of soot nucleation and evolution

### 4.1. Gas-phase chemistry

Gas-phase chemistry is described in the CHARME solver using a reduced mechanism for ethylene combustion, successfully applied in previous studies [25, 40], which includes 43 species and 304 reactions.

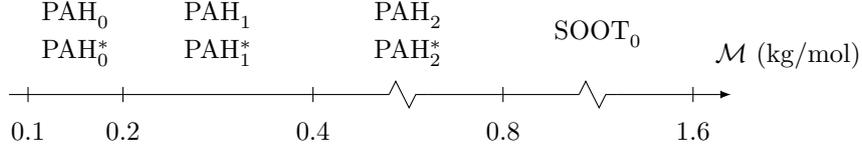


Figure 2: Definition of  $\text{PAH}_i$  and  $\text{PAH}_i^*$  sections [40].

#### 4.2. PAH modelling

Polycyclic aromatic hydrocarbons are modelled in the CHARME solver using the sectional method proposed by Di Domenico et al. [24], Blacha et al. [25], and recently updated by Eberle et al. [40]. Three sections of PAH and PAH radicals (respectively noted  $\text{PAH}_i$  and  $\text{PAH}_i^*$ ,  $0 \leq i \leq 2$ ), whose molecular weights range from 0.1 kg/mol to 0.8 kg/mol, are considered (see Fig. 2). A soot section  $\text{SOOT}_0$  is added for both the derivation of the reaction mechanism and the modelling of the nucleated soot particles.

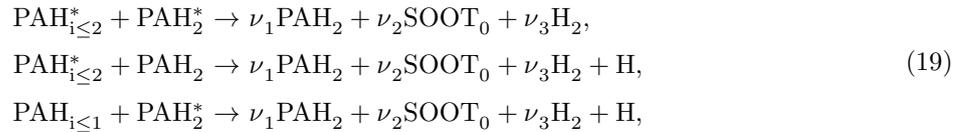
The atomic composition, the thermodynamic properties, as well as the viscosity for each section are calculated from reference polycyclic aromatic hydrocarbons [25, 40]. For the sake of simplicity, the binary diffusion coefficients of  $\text{PAH}_i$  and  $\text{PAH}_i^*$  are here assumed to be equal to the ones of the smallest PAH (benzene) and of its radical (phenyl), respectively. Their diffusion coefficients are computed through equation (5).

##### 4.2.1. $\text{PAH}_i$ - $\text{PAH}_i^*$ reaction mechanism

The reaction mechanism is composed of five sub-mechanisms [25, 40]: PAH-gas phase interaction, PAH collisions, PAH growth by addition of  $\text{C}_2\text{H}_2$ , PAH dehydrogenation and PAH oxidation by O, OH and  $\text{O}_2$ .  $\text{PAH}_i$  and  $\text{PAH}_i^*$  being minor species, their third-body efficiencies are additionally set to zero in the gas phase reaction mechanism for the present study.

##### 4.2.2. Soot nucleation rate

Soot nucleation is modelled through the collision of  $\text{PAH}_2$  and  $\text{PAH}_2^*$  with the other sections [40]:



where the stoichiometric coefficients  $\nu_1$ ,  $\nu_2$  and  $\nu_3$ , calculated using the work of Pope et al. [41], ensure the conservation of both mass and elements. The reaction rates are computed similarly to the study by Blacha et al. [25] and the reaction efficiencies from the work of Eberle et al. [40] are used without modification.

The mass production rate of  $\text{SOOT}_0$  – the soot nucleation rate  $\dot{\omega}_n$  – is computed as for a standard gas species [31] assuming a molecular weight  $\mathcal{M}_0$  equal to 1.2 kg/mol and transmitted to the dispersed phase solver SPARTACCUS at each time step, so that no transport equation is required for the latter species. Also note that the soot volume fraction, lower than 1 ppm in the simulation cases hereinafter (see Fig. 8), is far below usual validity limits of two-phase dispersed flow hypotheses [38] and therefore neglected in the CHARME solver.

### 4.3. Soot particles modelling

Soot particles are modelled in the SPARTACCUS solver by solid spheres, as mentioned in section 3. Their density  $\rho_s$  is assumed constant – typically between 1700 and 2000 kg/m<sup>3</sup> in the literature – and chosen equal to 1800 kg/m<sup>3</sup> [22] hereinafter. From the preliminary work of Blacha et al. [25], their specific heat capacity is taken equal to the one of acetylene.

#### 4.3.1. Particles nucleation

For each time step  $\Delta t$  and grid cell  $c$ , the mass of soot  $m_c$  and the number of physical particles  $N_c$  to be injected are calculated as follows:

$$m_c = \dot{\omega}_{n,c} \mathcal{V}_c \Delta t, \quad (20)$$

$$N_c = \frac{m_c \mathcal{N}_a}{\mathcal{M}_0}, \quad (21)$$

where  $\mathcal{N}_a$  is the Avogadro number.

If  $m_c$  has a non-zero value, a single numerical particle is generally injected with a numerical weight equal to  $N_c$ . Its radius  $r_0$  is given as a function of  $\rho_s$  and  $\mathcal{M}_0$  by (22):

$$r_0 = \left( \frac{3\mathcal{M}_0}{4\pi\mathcal{N}_a\rho_s} \right)^{1/3} = 0.64 \text{ nm} \quad (22)$$

Its velocity and temperature are initialised to the values in cell  $c$ , and its position is determined randomly from the equivalent cell diameter. In the present study, the numerical weight  $w_p$  of each particle  $p$  is nevertheless bounded at injection to ensure the representativeness of the particles population and limit the number of non-significant subjects. Considering an initial mass  $m_c$ , a numerical particle of maximum numerical weight is therefore injected until  $m_c$  reaches zero or  $w_p$  stands below the lower bound. Eventually, the remaining non-injectable mass is stored for a use in the next time step.

$r_0$  is additionally used as a removal criterion for the non-significant particles at the end of the transport step. Hence, particles are suppressed if their radius becomes lower than  $2^{-1/3}r_0$ , namely if their volume is at least twice as small as the one of the nucleated soot particles.

#### 4.3.2. Chemically-driven evolution

##### **General formulation**

The generic reaction of a soot particle SOOT with a species R is first considered:



where  $\text{SOOT}^\#$  is the state of SOOT after reaction with R, and P the associated product. The term  $\nu_{\text{H}_2}$  ensures mass conservation.

The molecular weight of  $\text{SOOT}^\#$  and the stoichiometric coefficient  $\nu$  are determined iteratively at each time step as follows:

$$\mathcal{M}^\# = n_C^\# [\mathcal{M}_C + H/C (\mathcal{M}^\#) \mathcal{M}_H], \quad (24)$$

and

$$\nu = \frac{\mathcal{M} - \mathcal{M}^\# + \nu_R \mathcal{M}_R - \nu_P \mathcal{M}_P}{2\mathcal{M}_H}, \quad (25)$$

where  $n_C^\#$  is the number of carbon atoms in SOOT<sup>#</sup>, calculated from the one in SOOT, R and P, and  $\mathcal{M}$  the molecular weight of SOOT.  $H/C$  is the ratio of hydrogen to carbon atoms in a soot particle, computed in the present study through the correlation introduced by Blacha et al. [25] from the work of Richter et al. [23]:

$$H/C = 0.4405\mathcal{M}^{-0.10524}, \quad (26)$$

with  $\mathcal{M}$  in kg/mol.

For a particle located in cell  $c$  at time  $t$ , the progress rate  $\mathcal{Q}$  of reaction (23) is given by equation (27),

$$\mathcal{Q} = \mathcal{K} [\text{R}]_c^{\nu_R} \underbrace{\frac{1}{\mathcal{N}_a \mathcal{V}_c}}_{\text{Apparent concentration of SOOT}}, \quad (27)$$

with  $\mathcal{K}$  the reaction rate constant and  $[\text{R}]_c$  the concentration of species R in  $c$ .

The evaluation of the reaction rate constants for each evolution model is detailed hereinafter, with  $[\mathcal{Y}]_c$  the set of gas species concentrations in  $c$ . The oxidation models are presented for the sake of completeness, however it is worth noting that their contribution to soot particles evolution in the following test cases is not significant.

#### **Surface growth by addition of C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>**

For surface growth by addition of C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, generic reaction (23) writes:



The reaction rate constant is calculated using the model of Frenklach and Wang [42, 43] as:

$$\mathcal{K}_{\text{C}_2\text{H}_2} = \mathcal{K}_{\text{C}_2\text{H}_2,s}(T_c) \alpha \chi_s(T_c, [\mathcal{Y}]_c) S, \quad (29)$$

where  $\mathcal{K}_{\text{C}_2\text{H}_2,s}$  is a per-site reaction rate constant,  $\alpha$  the fraction of reactive surface sites,  $\chi_s$  the number density of surface sites and  $S$  the particle surface.

#### **Oxidation by O<sub>2</sub>**

For oxidation by O<sub>2</sub>, generic reaction (23) reads:



The reaction rate constant, also computed using the model of Frenklach and Wang, is given by equation (31).

$$\mathcal{K}_{\text{O}_2} = \mathcal{K}_{\text{O}_2,s}(T_c) \alpha \chi_s(T_c, [\mathcal{Y}]_c) S \quad (31)$$

### ***Oxidation by OH***

For oxidation by OH, generic reaction (23) writes:



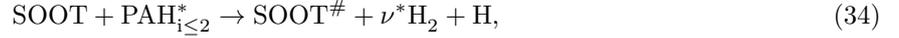
The reaction rate constant is calculated using the model of Neoh et al.[44] as:

$$\mathcal{K}_{\text{OH}} = \mathcal{N}_a \gamma_{\text{OH}} \left( \frac{\mathcal{R}T_c}{2\pi\mathcal{M}_{\text{OH}}} \right)^{0.5} S, \quad (33)$$

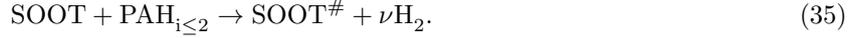
where the collision efficiency  $\gamma_{\text{OH}}$  is equal to 0.13.

### ***Condensation of PAH<sub>i</sub> and PAH<sub>i</sub><sup>\*</sup>***

By analogy to the nucleation reactions (19), the reaction product P of a soot particle with a PAH radical in (23) is chosen to be H. Therefore, the generic reaction reads for the condensation of PAH<sub>i</sub><sup>\*</sup>:



and can be written for the condensation of PAH<sub>i</sub> as:



The reaction rate constant is computed for both as follows:

$$\mathcal{K}_{\text{PAH}^{(*)}} = k_{vdw} \mathcal{N}_a \gamma_{\text{PAH}^{(*)}} \beta_{i,s} (d_i, S, T_c, l_c, \mu_c), \quad (36)$$

where  $k_{vdw}$  is the van der Waals enhancement factor, corresponding to the increase of the collision rate due to the attractive van der Waals forces between the collision partners, equal to 2.2 [45].  $\beta_{i,s}$  is the collision frequency and  $\gamma_{\text{PAH}^{(*)}}$  the collision efficiency, initially fixed to 0.3 [40] and discussed in subsection 5.4.

The collision frequency between PAH<sub>i</sub> or PAH<sub>i</sub><sup>\*</sup> and a soot particle is determined using the general Fuchs formulation [46], including transition from the free molecular regime to the continuum regime with increasing particle diameter. Apart from  $S$ ,  $\beta_{i,s}$  is a function of the PAH or PAH<sup>\*</sup> collision diameter  $d_i$ , as well as of the gas temperature  $T_c$ , mean free path  $l_c$  and viscosity  $\mu_c$ .  $d_i$ , in Ångström, is calculated for both PAH<sub>i</sub> and PAH<sub>i</sub><sup>\*</sup> through the correlation of Frenklach and Wang [12]:

$$d_i = 1.395\sqrt{2}\sqrt{n_{C_i}} \text{ [Å]}, \quad (37)$$

where  $n_{C_i}$  is the number of carbon atoms of the species PAH<sub>i</sub><sup>(\*)</sup>.

### ***Particle mass source term***

The mass source term of a particle is calculated as a function of the mass reaction rates associated to each evolution model  $M$  as:

$$\dot{\omega}_m = \sum_M \left( \mathcal{M}_M^\# - \mathcal{M} \right) \mathcal{Q}_M. \quad (38)$$

The mass of a particle being positive, the term  $\dot{\omega}_m \mathcal{V}_c \Delta t$  in equation 12 has to be higher than  $-m$ , with  $m$  the original mass of the particle. The reaction rate of all evolution models is therefore corrected by a factor  $\epsilon$  defined by equation (39),

$$\epsilon = \begin{cases} m / |\dot{\omega}_m \mathcal{V}_c \Delta t| & \text{if } \dot{\omega}_m \mathcal{V}_c \Delta t < -m, \\ 1 & \text{otherwise,} \end{cases} \quad (39)$$

so that the apparent reaction time associated to the particle for the feedback to the gas phase becomes  $\epsilon \Delta t$ .

### **Feedback source terms**

For a given evolution model  $M$  and a given particle  $p$ , the mass source term of species R, H<sub>2</sub> and P is expressed as follows:

$$\begin{pmatrix} \dot{\omega}_R \\ \dot{\omega}_{H_2} \\ \dot{\omega}_P \end{pmatrix}_{p,M} = w_p \epsilon_p \mathcal{Q}_{p,M} \begin{pmatrix} -\mathcal{M}_R \nu_R \\ \mathcal{M}_{H_2} \nu_P \\ \mathcal{M}_P \nu_P \end{pmatrix}_M, \quad (40)$$

and the feedback source term  $S_{k,c}^d$  of the dispersed phase on the gas phase in cell  $c$  as:

$$S_{k,c}^d = \sum_M \sum_{p \in \mathcal{P}_c(t)} \dot{\omega}_{k,p,M}, \quad k = R, H_2, P. \quad (41)$$

$S_{k,c}^d$ , along with the aforementioned source terms, allows a complete two-way coupling of the gas-phase and dispersed phase solvers.

#### *4.3.3. Collision parameters*

While soot particles are assumed to behave as tracers at the macroscopic scale, their trajectory at the mesoscopic one is driven by Brownian motion, namely by their interaction with the surrounding molecules of the gas phase. Hence, the collision frequency  $\beta_{12}$  of two soot particles is calculated as:

$$\beta_{12} = k_{vdw} \beta_{12}^*, \quad (42)$$

where  $\beta_{12}^*$  is the collision frequency function of Brownian motion introduced in the work of Fuchs [46].

$d_{crit}$  is also fixed to 13 nm as a first guess, one order of magnitude higher than the diameter of nucleated particles.

## **5. Validation and discussion**

### *5.1. Experimental test cases*

The ethylene-air flames simulated in the present study are burner-stabilised laminar premixed flames at atmospheric pressure investigated by Xu et al. [32] on a McKenna burner. Experimental measurements are advantageously available at three fuel equivalence ratios  $\phi$ , especially delivered as profiles of the major gas

Equivalence ratio	[-]	2.34	2.64	2.94
Cold gas velocity	[cm/s]	6.73	6.73	6.73
Cold gas temperature	[K]	298	298	298
$X_{\text{C}_2\text{H}_4}$	[%]	14.08	15.60	17.0
$X_{\text{O}_2}$	[%]	18.05	17.73	17.4
$X_{\text{N}_2}$	[%]	67.84	66.67	65.6

Table 1: Test cases inlet conditions.

species mole fraction, the primary particle diameter, and the soot volume fraction. The operating conditions for the three test cases are reported in Tab. 1.

Soot volume fraction profiles measured by intrusive sampling are given in Fig. 8 for indicative purposes only. Also note that the diameter of the transported spherical particles will be compared to the measured primary particle diameter in the following, which is consistent with the collision model used in the present study.

### 5.2. Numerical setup

The computational domain is 2D, 40 mm long and 1.5 mm wide. The mesh grid contains a total of 210 cells and is refined within the flame front, with a single cell in the transverse direction. The inlet boundary conditions are deduced from Tab. 1 for each test case. Atmospheric pressure combined with non-reflective acoustic conditions are imposed at the outlet, symmetry conditions are used elsewhere. Temperature profiles suggested by the International Sooting Flame Workshop [47] are additionally prescribed at each iteration of the CHARME solver. The time step is fixed to  $1 \mu\text{s}$  for both the gas phase and the dispersed phase solver, and the simulated physical time is chosen large enough to reach a steady-state solution.

A preliminary computation with Cantera [48] was carried out at each equivalence ratio. The solution obtained by only considering the gas phase reaction mechanism allows here to define a proper initial state for the CEDRE calculation.

### 5.3. Evaluation of the numerical methods

#### 5.3.1. Collision algorithm

Six numerical test cases are simulated to evaluate the statistical convergence of the collision algorithm as a function of the number of numerical particles. In all cases, only one cell, geometrically identical to the one located 30 mm above the burner, is considered. The CHARME solver and the transport step of the SPARTACCUS solver are here exceptionally disabled, the optimisation algorithm is also not used. The gas phase composition, temperature and pressure are taken from the results presented below at the intermediate fuel equivalence ratio  $\phi = 2.64$  at the same location. The soot volume fraction is set similarly to 0.37 ppm. The gas phase velocity, whose knowledge is not required by the collision step, is fixed to 0 m/s.

### *Monodisperse distribution*

For the first three test cases, the soot particle field is initialised with  $P$  identical numerical particles, where  $P$  is given in Tab. 2 along with the corresponding numerical weight. The particles initial diameter is the one of the nucleated particles, i.e.  $d_0 = 2r_0$ . The statistical convergence of the collision algorithm is assessed by comparing the temporal evolution of the mean particle diameter  $d_{10}$ , its standard deviation  $\sigma_d$ , and the number of physical particles in the control volume  $N_{phi}$  over 6 ms.

Case		M1	M2	M3
$P$	[-]	2048	$1 \times 10^6$	$1 \times 10^7$
Numerical weight	[-]	$3.9 \times 10^{11}$	$8.0 \times 10^8$	$8.0 \times 10^7$

Table 2: Parameters for the monodisperse distribution test cases.

For the entire time range, the absolute value of the relative discrepancy between cases M2 and M3 is lower than 0.26 % for the three variables, so that both simulations are considered as references. Figure 3 therefore only shows the evolution of  $d_{10}$ ,  $\sigma_d$  and  $N_{phi}$  for cases M1 and M2, as well as the relative discrepancy between the results. Decent agreement is noticed, although the initial information is supported by a low number of numerical particles with large numerical weights. The observed decay is acceptable both in absolute terms and regarding the need for resources associated with the increase of  $P$ , as reported in Tab. 3 for the present calculations carried out on one core of an Intel Xeon E5-2680v4 processor.

Case		M1	M2	M3
CPU time	[hours]	$2.1 \times 10^{-3}$	1.6	18
Memory	[Go]	0.155	11.5	122

Table 3: Computational resources for the monodisperse distribution test cases.

### *Bidisperse distribution*

For the last three test cases, the soot particle field is initialised with  $P$  numerical particles of diameter  $d_0$  and  $P$  numerical particles of diameter  $d_{crit}$ , where  $P$  is given in Tab. 4 along with the corresponding numerical weight. The statistical convergence of the collision algorithm is again assessed by comparing the temporal evolution of  $d_{10}$ ,  $\sigma_d$ , and  $N_{phi}$  over 6 ms. The point of the present cases is the transition of all particles to a non-coalescing regime after approximately 0.7 ms, while coalescing particles remained until the end of the simulation in the previous ones.

The absolute value of the relative discrepancy between cases B2 and B3 is lower than 0.20 % for the three variables over the entire time range. Both simulations are therefore considered as references. As for the monodisperse test cases, Fig. 4 shows the evolution of  $d_{10}$ ,  $\sigma_d$ , and  $N_{phi}$  for cases B1 and B2, as well as

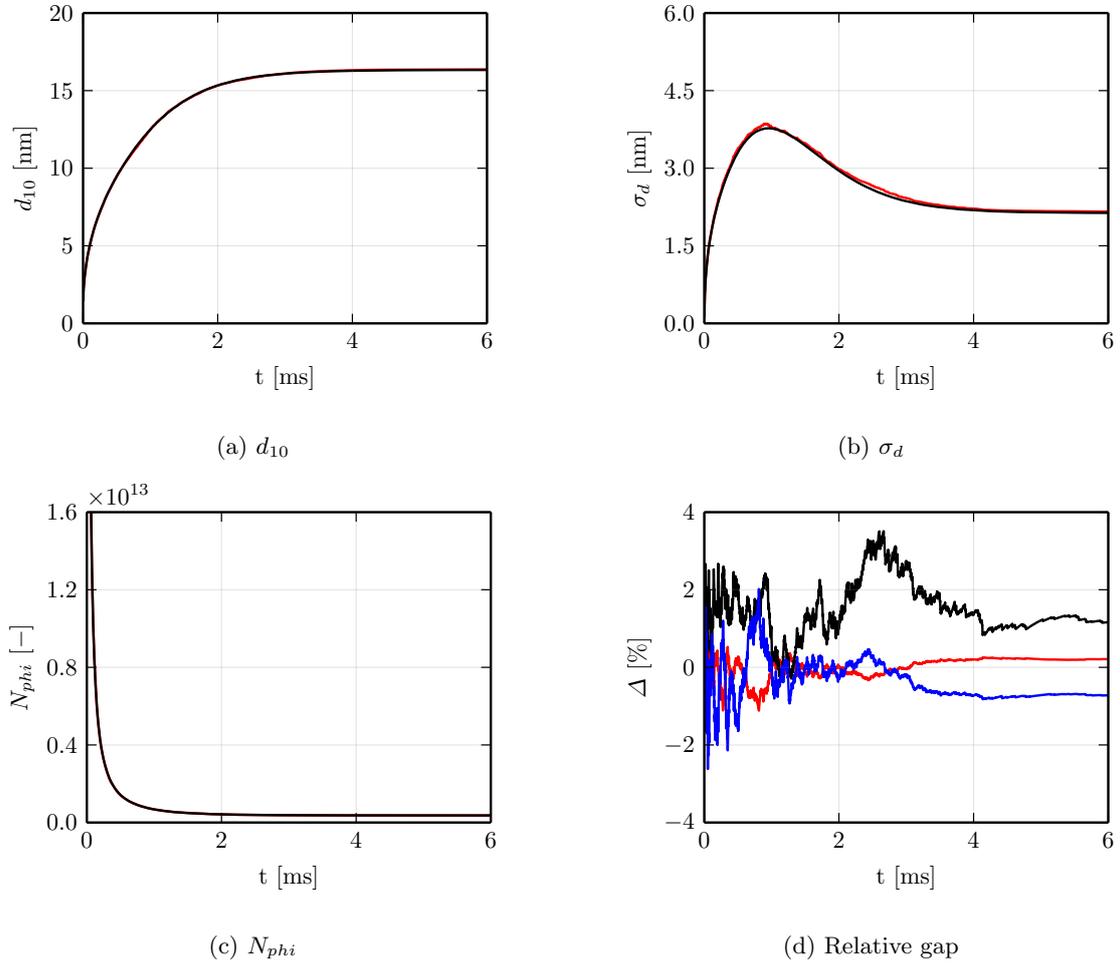


Figure 3: Mean ( $d_{10}$ ) and standard deviation ( $\sigma_d$ ) of the particle diameter and number of physical particle in the control volume ( $N_{phi}$ ) as a function of time for cases M1 (—) and M2 (—). Relative discrepancy between cases M1 and M2 for  $d_{10}$  (—),  $\sigma_d$  (—) and  $N_{phi}$  (—).

Case		B1	B2	B3
$P$	[—]	1024	$5 \times 10^5$	$5 \times 10^5$
Numerical weight	[—]	$7.8 \times 10^8$	$1.6 \times 10^6$	$1.6 \times 10^5$

Table 4: Parameters for the bidisperse distribution test cases.

the relative discrepancy between the results. Appreciable agreement is also visible, demonstrating the fine statistical convergence of the collision algorithm as a function of the number of particles.

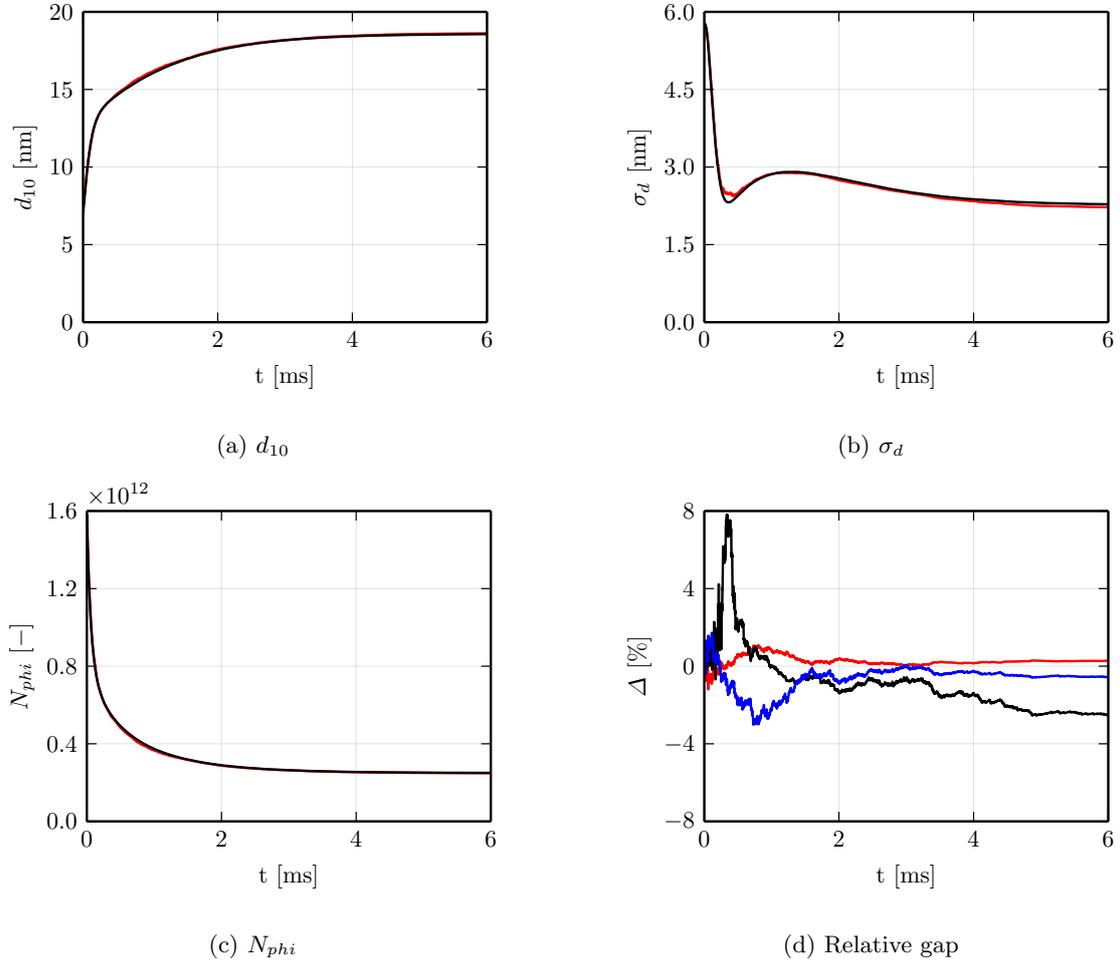


Figure 4: Mean ( $d_{10}$ ) and standard deviation ( $\sigma_d$ ) of the particle diameter and number of physical particle in the control volume ( $N_{phi}$ ) as a function of time for cases B1 (—) and B2 (—). Relative discrepancy between cases B1 and B2 for  $d_{10}$  (—),  $\sigma_d$  (—) and  $N_{phi}$  (—).

As a conclusion on the six test cases above, the collision algorithm alone is able to follow the evolution of the mean particle diameter, its standard deviation and of the number of physical particles, even though the initial number of numerical particles is low and their weight large.

### 5.3.2. Reduction intensity of the optimisation algorithm

In order to evaluate the statistical convergence of the quadtree-like algorithm, six cases are simulated at the intermediate equivalence ratio  $\phi = 2.64$ . All are identical, except for the maximum number  $N$  of numerical particles per cell, successively limited to 64, 128, 256, 512, 1024 and 2048 every 100 time steps. In each case, the properties of the particles are measured 20 mm and 30 mm above the burner for comparison

purposes, these two locations being denoted as measurement points in the following. The CHARME and SPARTACCUS solvers are, from now on, fully activated.

### Mean and standard deviation

Figure 5 compares the mean particle diameter  $d_{10}$  and its standard deviation  $\sigma_d$  at both measurement points and for all cases. For the sake of simplicity, the variables are normalised by the values reached at  $N = 2048$ , this simulation being considered as a reference given the very good convergence of  $d_{10}$  and  $\sigma_d$  with increasing  $N$ .

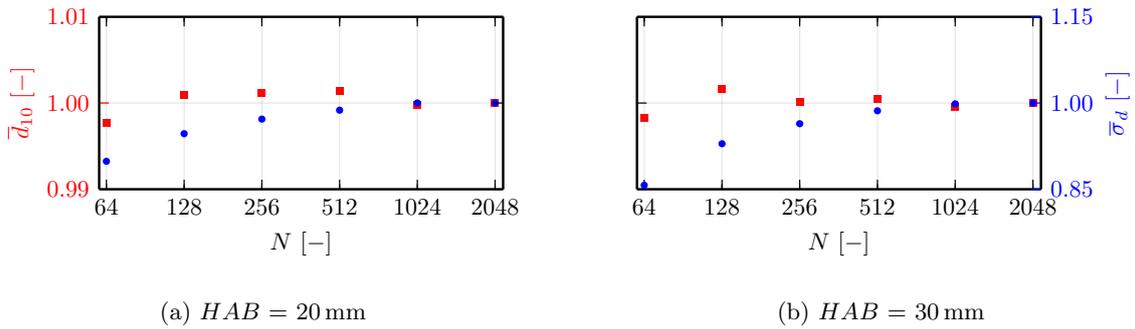


Figure 5: Normalised mean particle diameter (■) and standard deviation (●) as a function of  $N$  at the measurement points located 20 mm and 30 mm above the burner. For  $N = 2048$ ,  $d_{10} = 25.4$  nm and  $\sigma_d = 2.64$  nm (a),  $d_{10} = 26.9$  nm and  $\sigma_d = 2.60$  nm (b).

The gap between  $d_{10}$  and its reference value remains lower than 1%. In contrast, the gap reaches 14% for  $\sigma_d$  at the point located 30 mm above the burner for the lowest value of  $N$ , i.e. 64. Thus, while the algorithm allows to preserve the mean of the particle size distribution, even for low values of the parameter  $N$ , the gap for the standard deviation increases with the decrease of  $N$ . This behaviour, intrinsically related to the reduction of the particles population, is not surprising.  $N$  should just be set as a compromise between the computational cost and the accuracy in predicting the standard deviation, depending on the application. In the following, it will be taken equal to 256, which is assumed sufficient for the comparison with the experimental measurements, only available upstream of the second point.

### Particle size distribution

Figure 6 shows the particle size distribution at both measurement points and for all cases. As expected, the deviation from the reference case varies inversely with the parameter  $N$ . Nonetheless, even for strong limitations of the maximum number of particles per cell, the shape of the distribution – representative of the individual history of the particles – is preserved. Two peaks are visible at each point. The first one matches the diameter of nucleated soot particles  $d_0$ . The second one is lower bounded by the diameter  $d_1 = 2^{1/3}d_{crit}$ , which corresponds to the diameter of a particle formed through the coalescence of two particles with a diameter equal to  $d_{crit}$ . It indicates that coalescence stops very early downstream of the flame. The evolution of the soot particles, evidenced by the weakening of the first peak and the shift of

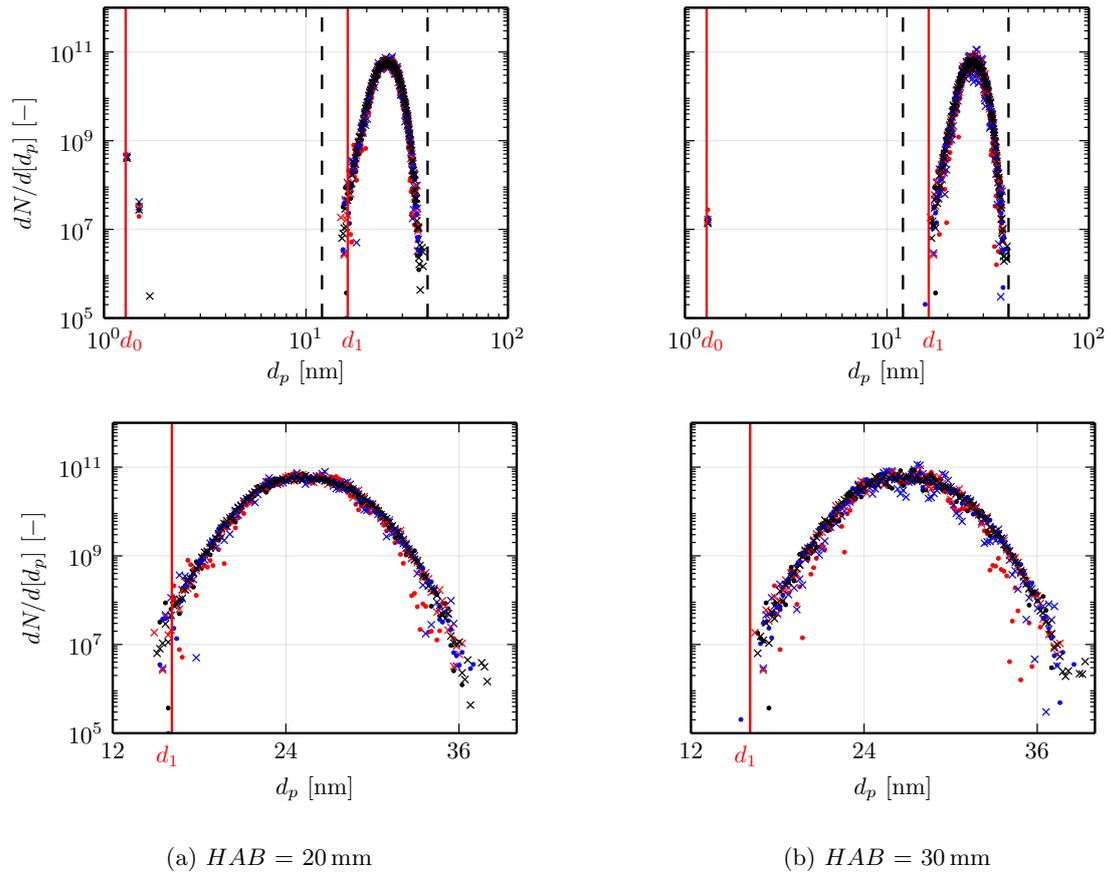


Figure 6: Particle size distribution as a function of  $N$  at the measurement points located 20 mm and 30 mm above the burner ( $\bullet = 64$ ,  $\times = 128$ ,  $\bullet = 256$ ,  $\times = 512$ ,  $\bullet = 1024$ ,  $\times = 2048$ ). The bottom figures are a zoom of the top ones in the region delimited by the black dashed lines.

the second peak towards higher diameters with increasing height above the burner (HAB), is associated to surface growth and condensation, as well as to coalescence of the remaining or newly nucleated small particles with the bigger ones.

### 5.3.3. Reduction frequency of the optimisation algorithm

The quadtree-like algorithm is now successively applied every  $K$  time steps, with  $K = 1, 10$  and  $1000$ ,  $N$  being fixed to 256. The three cases are simulated at the intermediate equivalence ratio  $\phi = 2.64$  to assess the impact of this reduction frequency on the first and second order statistical moments of the particle size distribution.

Figure 7 compares the mean particle diameter  $d_{10}$  and its standard deviation  $\sigma_d$  at both measurement points and for all cases. The variables are normalised by the values previously obtained for  $K = 100$  for the sake of clarity.

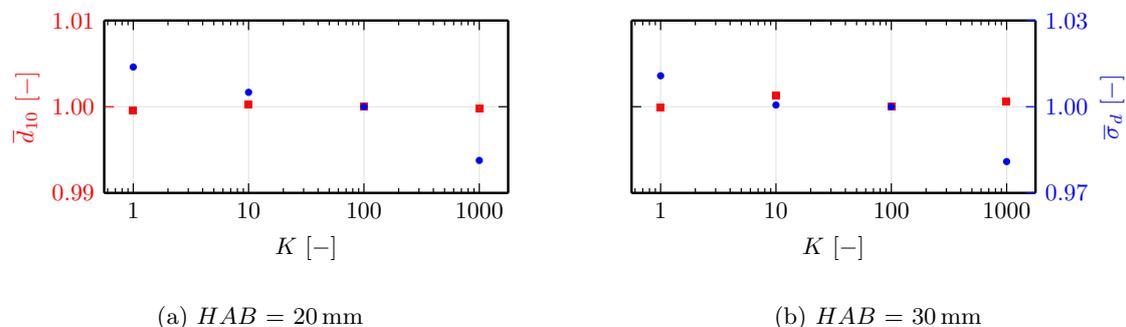


Figure 7: Normalised mean particle diameter (■) and standard deviation (●) as a function of  $K$  at the measurement points located 20 mm and 30 mm above the burner. For  $K = 100$ ,  $d_{10} = 25.4$  nm and  $\sigma_d = 2.57$  nm (a),  $d_{10} = 26.9$  nm and  $\sigma_d = 2.50$  nm (b).

The gap between  $d_{10}$  or  $\sigma_d$  and their reference values always remains smaller than 2%, so that the influence of the reduction frequency is considered to be negligible within the explored range of values. Still, the computational cost of the Lagrangian solver increases for  $K = 1000$  due to the growth of the particles population between two reductions. The parameter  $K$  will therefore be taken equal to 100 in the following.

### 5.3.4. Remark on the computational cost

As a guide for comparison to sectional methods or methods of moments, the computational cost of the Lagrangian solver represents 33 % of the total cost for  $N = 256$  and  $K = 100$ , 53 transport equations being solved for the gas-phase.

## 5.4. Comparison with experimental measurements

### 5.4.1. Soot volume fraction and particle diameters

Figures 8 and 9 present the profiles of soot volume fraction  $f_v$  and mean particle diameter  $d_{10}$  at the three fuel equivalence ratios. From a global point of view, the model proves its ability to reproduce the

growth of both quantities with increasing values of  $\phi$ . Fairly good agreement with the measurements is especially noticed for the soot volume fraction at  $\phi = 2.64$  and  $\phi = 2.94$ . However, while the mean particle diameter is correctly predicted in the first case, it is underestimated in the second one. The sensitivity of the model to the limitation of coalescence processes will therefore be discussed below. At  $\phi = 2.34$ , the soot volume fraction and the mean particle diameter are both underrated. The temperature profile being fixed, the influence of two parameters has here to be investigated, namely the collision efficiency  $\gamma_{\text{PAH}^*}$ , introduced in subsection 4.3, and the kinetic constants for  $\text{C}_2\text{H}_2$  addition.

### *Limitation of coalescence processes*

Figure 9 show the profile of  $d_{10}$  at the three fuel equivalence ratios for two additional values of the critical diameter  $d_{crit}$ , i.e. 9.1 nm and 18 nm. As expected, the increase of  $d_{crit}$  promotes coalescence, which augments the size of the particles. At  $\phi = 2.34$ , coalescence stops far downstream of the flame zone, so that the impact of the critical diameter is only discernible close to the outlet. Note that the profiles of  $f_v$  are not presented since not deeply affected by the critical diameter.

### *Collision efficiency $\gamma_{\text{PAH}^*}$*

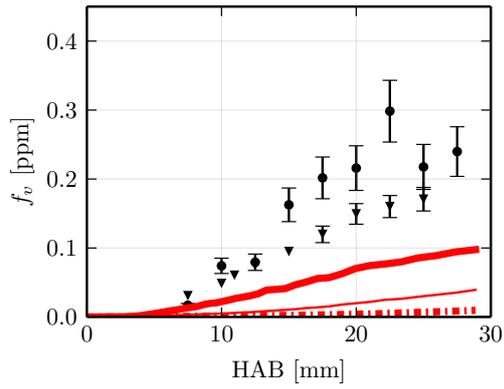
Figure 10 compare the profiles of  $f_v$  and  $d_{10}$  at  $\phi = 2.34$  for two values of the collision efficiency, i.e. 0.3 (reference simulation) and 1.0. Both quantities increase with  $\gamma_{\text{PAH}^*}$  due to improved condensation. The consumption of the PAH molecules and radicals also modifies the distribution of these species above the burner, which reduces the soot nucleation rate, displayed in Fig. 10, and the particle number density. The growth of the particles however overcompensates this phenomenon, as evidenced by the elevation of the soot volume fraction. For the sake of completeness, Fig. 10 shows the aforementioned profiles for two additional combinations of collision efficiencies, i.e. 1.0 for PAH molecules with 0.3 for radical species, and vice versa. The introduction of such an asymmetry demonstrates that PAH condensation onto soot particles overrides that attributed to  $\text{PAH}^*$ .

### *Kinetic of $\text{C}_2\text{H}_2$ addition*

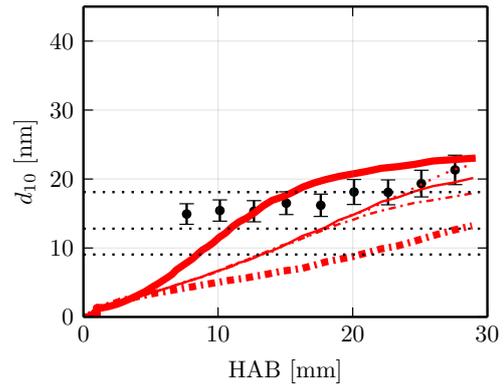
Equivalence ratio	[-]	2.34	2.64	2.94
Estimated adiabatic flame temperature	[K]	1728	1583	1449

Table 5: Adiabatic flame temperatures (estimated from a preliminary equilibrium calculation carried out with Cantera and only considering the gas phase reaction mechanism).

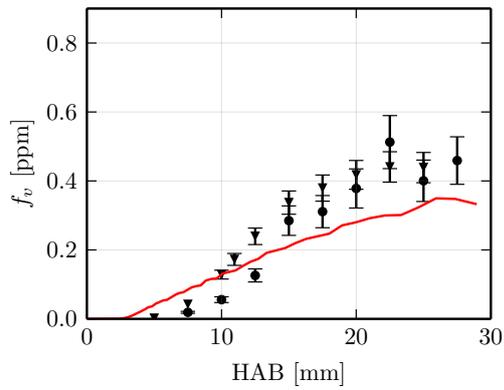
As indicated in subsection 4.3, the reaction rate constant for  $\text{C}_2\text{H}_2$  addition is proportional to the fraction of active surface sites  $\alpha$ . In the present study,  $\alpha$  is calculated through the correlation of Kazakov et al. [43] from the maximum flame temperature assimilated to the adiabatic one  $T_{ad}$ . This is reported in Tab. 5 for the three fuel equivalence ratios investigated. At  $\phi = 2.34$ , no significant sensitivity of the volume fraction and



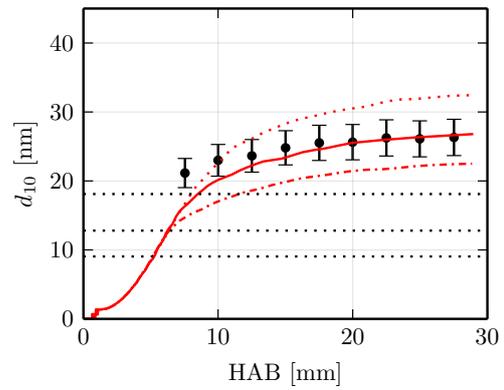
(a)  $\phi = 2.34$



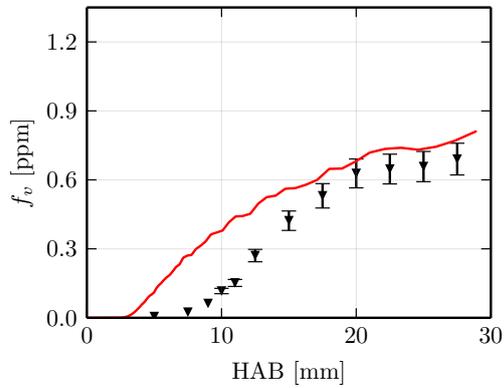
(a)  $\phi = 2.34$



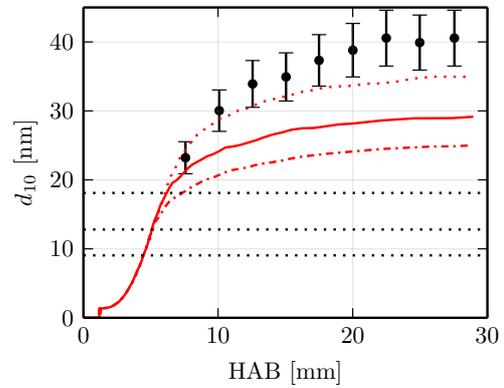
(b)  $\phi = 2.64$



(b)  $\phi = 2.64$



(c)  $\phi = 2.94$



(c)  $\phi = 2.94$

Figure 8: Soot volume fraction along height above the burner: Xu - laser extinction ( $\blacktriangledown$ ), Xu - sampling ( $\bullet$ ), CEDRE at  $d_{crit} = 13$  nm ( $\text{---}$ ), CEDRE at  $T_{max} - 50$  K ( $\text{---}$ ) and  $T_{max} + 50$  K ( $\text{---}$ ).

Figure 9: Mean particle diameter along height above the burner: Xu ( $\bullet$ ), CEDRE at  $d_{crit} = 9.1$  nm ( $\text{---}$ ), 13 nm ( $\text{---}$ ), 18 nm ( $\text{---}$ ), CEDRE at  $T_{max} - 50$  K ( $\text{---}$ ) and  $T_{max} + 50$  K ( $\text{---}$ ). The critical diameters are reminded by the black dashed lines.

mean particle diameter to variations of the temperature value used could however be highlighted. Hence, the present study focuses on their sensitivity to the pre-exponential factor  $A_{sg}$  of the per-site reaction rate constant.

Figure 11 shows the profiles of soot volume fraction and mean particle diameter at  $\phi = 2.34$  for  $A_{sg}/A_{sg}^0$  equal to 1 (reference simulation) and 10. As expected, both  $f_v$  and  $d_{10}$  increase with the pre-exponential factor. Nevertheless, the higher consumption of acetylene due to surface growth has no discernible impact on its distribution above the burner. The reduction of the soot nucleation rate, although limited, is therefore directly linked to the stronger consumption of PAH molecules and radicals with increasing particle size in the flame zone.

### *Discussion*

According to the sensitivity analysis, a critical diameter equal to 18 nm offers the best compromise for the three fuel equivalence ratios, at least as a first approximation. As a result, this value is retained, although its validity for different fuels, combustion and turbulence regimes should be investigated in the future.

Concerning the collision efficiencies for PAH/PAH\* condensation and the kinetic constants for  $C_2H_2$  addition, no change in the standard values can be justified without further validation. The reported results however highlight the major role of PAH condensation on both particle nucleation and growth.

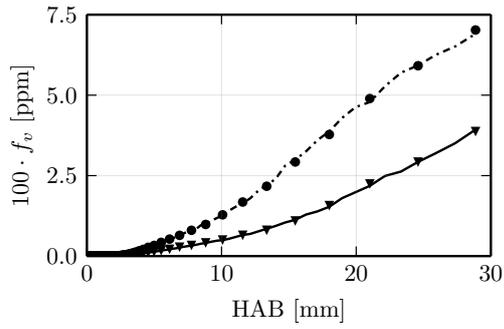
#### *5.4.2. Temperature profiles*

In order to emphasize the sensitivity of the soot properties to the temperature level, the profile imposed at  $\phi = 2.34$  is rescaled through an homothetic transformation, so that profiles with maximum values varying of  $\pm 50$  K compared to the initial one can be tested. Strictly speaking, for a burner-stabilised flame, the temperature profile should result from the coupling between injection, combustion and heat transfer to the gas phase, the dispersed phase and the burner itself. Such a simulation is however beyond the scope of the present study.

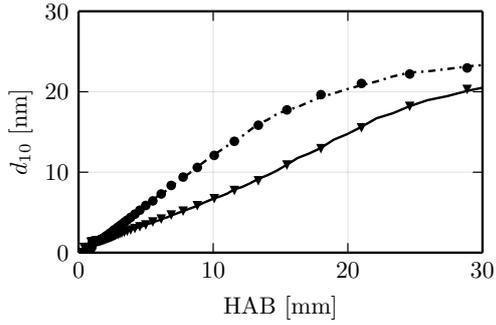
Figures 8 and 9 compare the profiles of soot volume fraction and mean particle diameter for increasing temperature levels,  $d_{crit}$  being fixed to its default value, i.e. 13 nm. As discussed in the work of Mueller et al. [13], the soot volume fraction is higher with lower flame temperatures, which is here directly linked to enhanced nucleation. The mean particle diameter also increases following the higher number of particles and the induced multiplication of coalescence events. Coalescence finally stops earlier, hence a ceiling of the particle diameter, already visible at  $\phi = 2.64$  and  $\phi = 2.94$ , is observed.

#### *5.4.3. Major gas species*

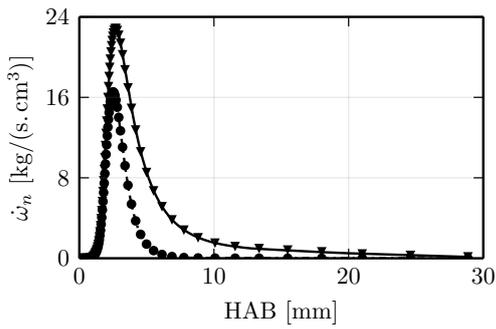
Figures 12 and 13 present the mole fraction profiles of the major gas species at the three fuel equivalence ratios for the retained value of  $d_{crit}$ , i.e. 18 nm. Fairly good agreement with the measurements is noticed for the main combustion products (CO,  $CO_2$  and  $H_2O$ ) and for the intermediate species  $C_2H_2$ . The ethylene mole fraction is overestimated downstream the flame front in all cases. However, at the measured levels, experimental uncertainties are known to exceed 15 % [32].



(a) Soot volume fraction

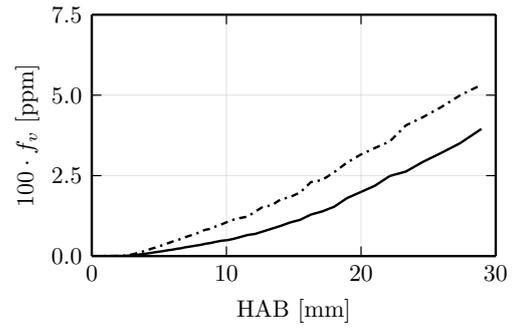


(b) Particle diameter

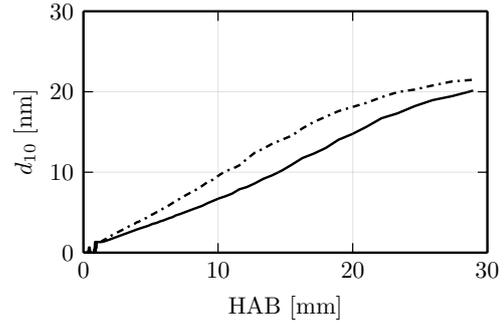


(c) Nucleation rate

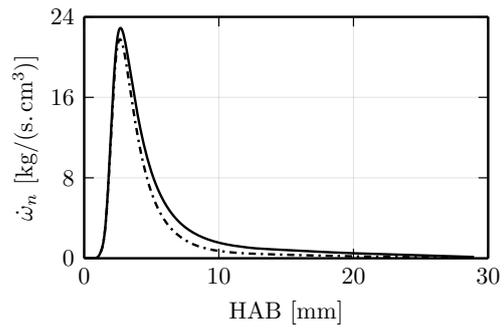
Figure 10: Influence of the collision efficiency for condensation:  $\gamma_{\text{PAH}}/\gamma_{\text{PAH}^*} = 0.3/1.0$  ( $\blacktriangledown$ ),  $1.0/0.3$  ( $\bullet$ ),  $0.3/0.3$  ( $\text{—}$ ),  $1.0/1.0$  ( $\text{---}$ ). Variables of interest along height above the burner.



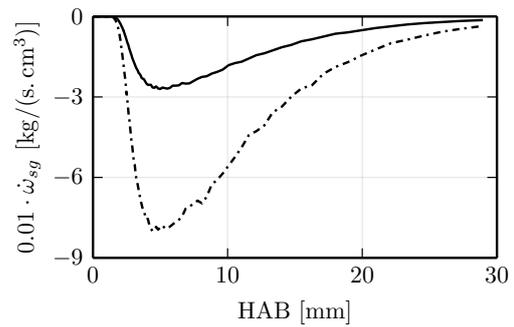
(a) Soot volume fraction



(b) Particle diameter

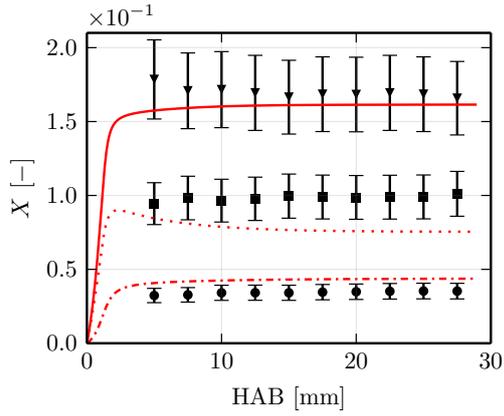


(c) Soot nucleation rate

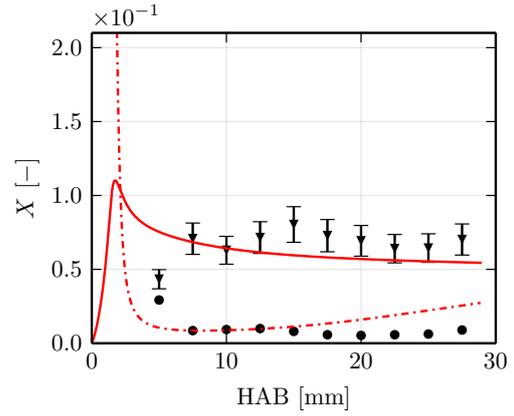


(d) Acetylene mass reaction rate (surface growth)

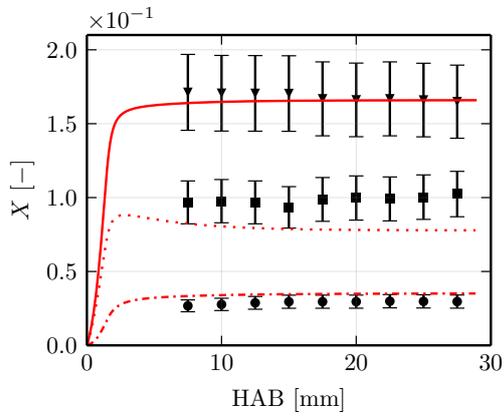
Figure 11: Influence of the chemical kinetics for  $\text{C}_2\text{H}_2$  addition:  $A_{sg} = 8.4 \times 10^5 \text{ m}^3/(\text{mol} \cdot \text{s})$  (reference,  $\text{—}$ ),  $8.4 \times 10^6 \text{ m}^3/(\text{mol} \cdot \text{s})$  ( $\text{---}$ ). Variables of interest along height above the burner.



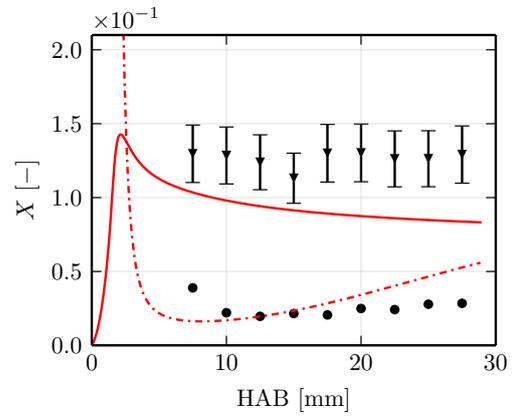
(a)  $\phi = 2.34$



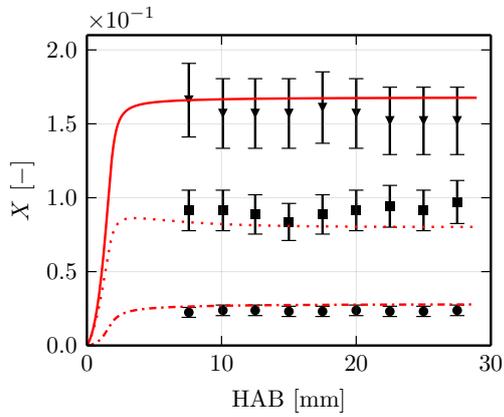
(a)  $\phi = 2.34$



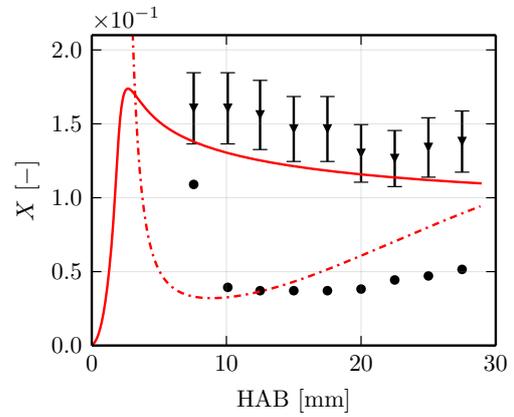
(b)  $\phi = 2.64$



(b)  $\phi = 2.64$



(c)  $\phi = 2.94$



(c)  $\phi = 2.94$

Figure 12: Mole fractions of the main combustion products: CO (—/▼), CO<sub>2</sub> (- - - / ●) and H<sub>2</sub>O (- · · · / ■). Lines are for CEDRE, symbols for experimental measurements.

Figure 13: C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> and C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> mole fractions: 5 × C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> (—/▼) and 50 × C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> (- - - / ●). Lines are for CEDRE, symbols for experimental measurements.

## 6. Conclusion

A Lagrangian description of soot particles evolution and dynamics, coupled with a reduced gas phase reaction mechanism and a sectional model for polycyclic aromatic hydrocarbons, is proposed. It was applied with some success to the simulation of laminar premixed ethylene-air flames at three fuel equivalence ratios. The statistical convergence of the collision algorithm – as a function of the number and numerical weight of the particles – and of the population reduction algorithm – as a function of the reduction intensity and frequency – was first highlighted. The evolution model was then contrasted with experimental measurements, showing its ability to reproduce the growth of the soot volume fraction and the mean particle diameter with increasing equivalence ratio and decreasing temperature. In particular, the suggested description of coalescence processes allows fairly good agreement of the mean particle diameter with the measurements, in terms of both curve shape and level. Finally, the strong sensitivity of soot nucleation and growth to PAH condensation was evidenced.

The present study, restricted to laminar flames, constitutes a prerequisite towards the use of the Lagrangian tracking method in a realistic turbulent combustion chamber. In addition, the modelling of soot aggregates, relevant to radiative heat transfer, has to be addressed, as well as the sensitivity of the critical coalescence diameter over which coalescence is prohibited to the fuel composition and the combustion regime.

## References

- [1] L.-H. Dorey, Modélisation des phénomènes couplés combustion-formation des suies-transferts radiatifs dans les chambres de combustion de turbine à gaz, Ph.D. thesis, École centrale de Paris (2012).
- [2] J. B. Moss, Modelling Soot Formation for Turbulent Flame Prediction, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1994, pp. 551–568.
- [3] B. Magnussen, B. Hjertager, On mathematical modeling of turbulent combustion with special emphasis on soot formation and combustion, Symposium (International) on Combustion 16 (1) (1977) 719–729.
- [4] G. Legros, J. Torero, Phenomenological model of soot production inside a non-buoyant laminar diffusion flame, Proceedings of the Combustion Institute 35 (3) (2015) 2545–2553.
- [5] K. Leung, R. Lindstedt, W. Jones, A simplified reaction mechanism for soot formation in nonpremixed flames, Combustion and Flame 87 (3) (1991) 289–305.
- [6] L. H. Dorey, N. Bertier, L. Tessé, F. Dupoirieux, Soot and radiation modeling in laminar ethylene flames with tabulated detailed chemistry, Comptes Rendus - Mécanique 339 (12) (2011) 756–769.
- [7] I. M. Kennedy, Models of soot formation and oxidation, Progress in Energy and Combustion Science 23 (2) (1997) 95–132.
- [8] H. Wang, M. Frenklach, A detailed kinetic modeling study of aromatics formation in laminar premixed acetylene and ethylene flames, Combustion and Flame 110 (1-2) (1997) 173–221.
- [9] A. D’Anna, J. H. Kent, A model of particulate and species formation applied to laminar, nonpremixed flames for three aliphatic-hydrocarbon fuels, Combustion and Flame 152 (4) (2008) 573–587.
- [10] C. Saggese, S. Ferrario, J. Camacho, A. Cuoci, A. Frassoldati, E. Ranzi, H. Wang, T. Faravelli, Kinetic modeling of particle size distribution of soot in a premixed burner-stabilized stagnation ethylene flame, Combustion and Flame 162 (9) (2015) 3356–3369.
- [11] P. Rodrigues, B. Franzelli, R. Vicquelin, O. Gicquel, N. Darabiha, Coupling an LES approach and a soot sectional model for the study of sooting turbulent non-premixed flames, Combustion and Flame 190 (2018) 477–499.

- [12] M. Frenklach, H. Wang, Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation, in: H. Bockhorn (Ed.), *Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1994, pp. 165–192.
- [13] M. E. Mueller, G. Blanquart, H. Pitsch, Hybrid Method of Moments for modeling soot formation and growth, *Combustion and Flame* 156 (6) (2009) 1143–1155.
- [14] M. E. Mueller, G. Blanquart, H. Pitsch, A joint volume-surface model of soot aggregation with the method of moments, *Proceedings of the Combustion Institute* 32 (1) (2009) 785–792.
- [15] J. Z. Wen, M. J. Thomson, S. H. Park, S. N. Rogak, M. F. Lightstone, Study of soot growth in a plug flow reactor using a moving sectional model, *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (1) (2005) 1477–1483.
- [16] S. H. Park, S. N. Rogak, A novel fixed-sectional model for the formation and growth of aerosol agglomerates, *Journal of Aerosol Science* 35 (11) (2004) 1385–1404.
- [17] C. Eberle, P. M. Gerlinger, M. Aigner, Large Eddy Simulations of a Sooting Lifted Turbulent Jet-Flame, in: 55th AIAA Aerospace Sciences Meeting, AIAA SciTech Forum, American Institute of Aeronautics and Astronautics, 2017.
- [18] O. Gicquel, N. Darabiha, D. Thévenin, Laminar premixed hydrogen/air counterflow flame simulations using flame prolongation of ILDM with differential diffusion, *Proceedings of the Combustion Institute* 28 (2) (2000) 1901–1908.
- [19] J. A. Van Oijen, F. A. Lammers, P. H. De Goeij, Modeling of complex premixed burner systems by using flamelet-generated manifolds, *Combustion and Flame* 127 (3) (2001) 2124–2134.
- [20] B. Fiorina, R. Vicquelin, P. Auzillon, N. Darabiha, O. Gicquel, D. Veynante, A filtered tabulated chemistry model for LES of premixed combustion, *Combustion and Flame* 157 (3) (2010) 465–475.
- [21] A. Boucher, N. Bertier, F. Dupoirieux, A method to extend flamelet manifolds for prediction of NO<sub>x</sub> and long time scale species with tabulated chemistry, *International Journal of Sustainable Aviation* 1 (2) (2014) 181–202.
- [22] B. Zamuner, F. Dupoirieux, Numerical Simulation of Soot Formation in a Turbulent Flame with a Monte-Carlo PDF Approach and Detailed Chemistry, *Combustion Science and Technology* 158 (1) (2000) 407–438.
- [23] H. Richter, S. Granata, W. H. Green, J. B. Howard, Detailed modeling of PAH and soot formation in a laminar premixed benzene/oxygen/argon low-pressure flame, *Proceedings of the Combustion Institute* 30 (1) (2005) 1397–1405.
- [24] M. Di Domenico, P. Gerlinger, M. Aigner, Development and validation of a new soot formation model for gas turbine combustor simulations, *Combustion and Flame* 157 (2) (2010) 246–258.
- [25] T. Blacha, M. Di Domenico, P. Gerlinger, M. Aigner, Soot predictions in premixed and non-premixed laminar flames using a sectional approach for PAHs and soot, *Combustion and Flame* 159 (1) (2012) 181–193.
- [26] L. Gallen, A. Felden, E. Riber, B. Cuenot, Lagrangian tracking of soot particles in LES of gas turbines, *Proceedings of the Combustion Institute* (2018).
- [27] J. C. Ong, K. M. Pang, J. H. Walther, J.-H. Ho, H. K. Ng, Evaluation of a Lagrangian Soot Tracking Method for the prediction of primary soot particle size under engine-like conditions, *Journal of Aerosol Science* 115 (2018) 70–95.
- [28] A. Refloch, B. Courbet, A. Murrone, P. Villedieu, C. Laurent, P. Gilbank, J. Troyes, L. Tessé, G. Chaineray, J. Dargaud, et al., Cedre software, *AerospaceLab* (2) (2011).
- [29] J.-L. Consalvi, F. Liu, J. Contreras, M. Kashif, G. Legros, S. Shuai, J. Wang, Numerical study of soot formation in laminar coflow diffusion flames of methane doped with primary reference fuels, *Combustion and Flame* 162 (4) (2015) 1153–1163.
- [30] J. Hirschfelder, R. B. Bird, C. F. Curtiss, *Molecular theory of gases and liquids* (1964).
- [31] T. Poinso, D. Veynante, *Theoretical and Numerical Combustion*, 2nd Edition, R.T. Edwards, Inc., 2005.
- [32] F. Xu, P. B. Sunderland, G. M. Faeth, Soot formation in laminar premixed ethylene/air flames at atmospheric pressure, *Combustion and Flame* 108 (4) (1997) 471–493.
- [33] R. A. Dobbins, Soot inception temperature and the carbonization rate of precursor particles, *Combustion and Flame* 130 (3) (2002) 204–214.
- [34] F. A. Williams, *Spray Combustion and Atomization*, *Physics of Fluids* 1 (6) (1958) 541.

- [35] P. Villedieu, J. Hylkema, Une méthode particulière aléatoire reposant sur une équation cinétique pour la simulation numérique des sprays denses de gouttelettes liquides, *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series I - Mathematics* 325 (3) (1997) 323–328.
- [36] J. Hylkema, P. Villedieu, A random particle method to simulate coalescence phenomena in dense liquid sprays, in: C.-H. Bruneau (Ed.), *Sixteenth International Conference on Numerical Methods in Fluid Dynamics*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1998, pp. 488–493.
- [37] J. J. Hylkema, Modélisation cinétique et simulation numérique d'un brouillard dense de gouttelettes : application aux propulseurs à poudre, Ph.D. thesis (1999).
- [38] A. Murrone, P. Villedieu, Numerical modeling of dispersed two-phase flows, *AerospaceLab* (2) (2011).
- [39] M. De Berg, O. Cheong, M. Van Kreveld, M. Overmars, Computational Geometry: Algorithms and Applications, in: *Computational Geometry*, 2008, pp. 307–322.
- [40] C. Eberle, P. Gerlinger, M. Aigner, A sectional PAH model with reversible PAH chemistry for CFD soot simulations, *Combustion and Flame* 179 (2017) 63–73.
- [41] C. J. Pope, J. B. Howard, Simultaneous Particle and Molecule Modeling (SPAMM): An Approach for Combining Sectional Aerosol Equations and Elementary Gas-Phase Reactions, *Aerosol Science and Technology* 27 (1) (1997) 73–94.
- [42] M. Frenklach, H. Wang, Detailed modeling of soot particle nucleation and growth, *Symposium (International) on Combustion* 23 (1) (1991) 1559–1566.
- [43] A. Kazakov, H. Wang, M. Frenklach, Detailed modeling of soot formation in laminar premixed ethylene flames at a pressure of 10 bar, *Combustion and Flame* 100 (1-2) (1995) 111–120.
- [44] K. G. Neoh, J. B. Howard, A. F. Sarofim, Soot Oxidation in Flames, in: D. C. Siegla, G. W. Smith (Eds.), *Particulate Carbon: Formation During Combustion*, Springer US, Boston, MA, 1981, pp. 261–282.
- [45] S. J. Harris, I. M. Kennedy, The Coagulation of Soot Particles with van der Waals Forces, *Combustion Science and Technology* 59 (4-6) (1988) 443–454.
- [46] N. A. Fuchs, *The mechanics of aerosols*, Pergamon Press, Oxford, 1964.
- [47] International Sooting Flame (ISF) Workshop.  
URL <https://www.adelaide.edu.au/cet/isfworkshop/data-sets>
- [48] D. G. Goodwin, H. K. Moffat, R. L. Speth, Cantera: An object-oriented software toolkit for chemical kinetics, thermodynamics, and transport processes, <http://www.cantera.org>, version 2.3.0 (2017).



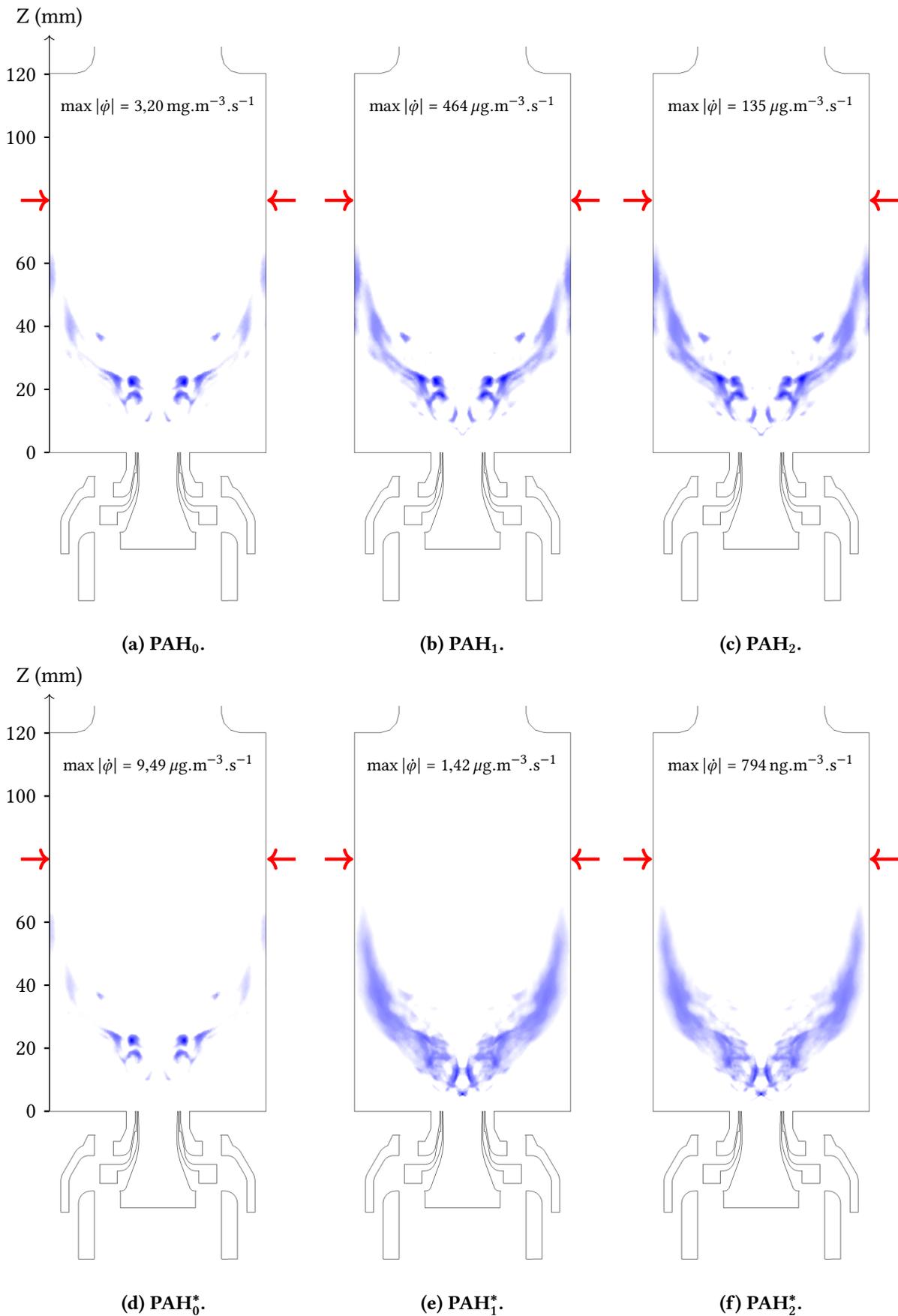
---

## **Annexe B**

# **Résultats complémentaires sur la configuration FIRST**

---

On présente dans cette annexe les champs moyens des taux de condensation des PAH<sup>(\*)</sup> sur les particules dans le plan médian de la chambre de combustion FIRST.



**FIGURE B.1 – Champs moyens des taux de condensation ( $\dot{\phi}$ ) des  $\text{PAH}^{(*)}$  sur les particules dans le plan médian de la chambre de combustion. L'intensité est croissante du blanc au bleu. Les flèches indiquent la position des injecteurs secondaires.**

---

# Bibliographie

---

- [1] ATTILI, A. et BISETTI, F. Application of a robust and efficient Lagrangian particle scheme to soot transport in turbulent flames. *Computers & Fluids* 84 (2013), 164–175 (cf. p. 4).
- [2] BALTHASAR, M. et KRAFT, M. A stochastic approach to calculate the particle size distribution function of soot particles in laminar premixed flames. *Combustion and Flame* 133:3 (2003), 289–298 (cf. p. 4).
- [3] BERTIER, N. Simulation des grandes échelles en aérothermique sur des maillages non-structurés généraux. Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie, 2006 (cf. p. 17, 19).
- [4] BLACHA, T. Effiziente Rußmodellierung in laminaren und turbulenten Flammen unterschiedlicher Brennstoffe. Thèse de doct. Universität Stuttgart, 2012 (cf. p. 36–38).
- [5] BLACHA, T., DI DOMENICO, M., GERLINGER, P. et AIGNER, M. Soot Modeling in Partially Premixed C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Air Flames. *48th AIAA Aerospace Sciences Meeting Including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition*. Aerospace Sciences Meetings. American Institute of Aeronautics et Astronautics, 2010 (cf. p. 37).
- [6] BLACHA, T., DI DOMENICO, M., GERLINGER, P. et AIGNER, M. Soot predictions in premixed and non-premixed laminar flames using a sectional approach for PAHs and soot. *Combustion and Flame* 159:1 (2012), 181–193 (cf. p. 37–39).
- [7] BLANQUART, G. et PITTSCH, H. A joint volume-surface-hydrogen multi-variate model for soot formation. *Combustion Generated Fine Carbonaceous Particles* (2009), 437–463 (cf. p. 46).
- [8] BOUCHER, A. Modélisation de la formation des polluants au sein des foyers aéronautiques par une méthode de chimie tabulée. Thèse de doct. École centrale de Paris, 2015 (cf. p. 2, 4, 14, 17, 28, 33, 120).
- [9] BOUCHER, A., BERTIER, N. et DUPOIRIEUX, F. A method to extend flamelet manifolds for prediction of NO<sub>x</sub> and long time scale species with tabulated chemistry. *International Journal of Sustainable Aviation* 1:2 (2014), 181–202 (cf. p. 16).
- [10] BOUYGES, M., DELLINGER, N. et SENONER, J. M. *HPC-CEDRE : équilibrage de charge par la répartition spatiale des particules*. Rapp. tech. 2018 (cf. p. 106).
- [11] CAILLER, M. Virtual chemical mechanisms optimized to capture pollutant formation in turbulent flames. Thèse de doct. CentraleSupélec, 2018 (cf. p. 16).
- [12] CAMACHO, J., LIU, C., GU, C., LIN, H., HUANG, Z., TANG, Q., YOU, X., SAGGESE, C., LI, Y., JUNG, H., DENG, L., WLOKAS, I. et WANG, H. Mobility size and mass of nascent soot particles in a benchmark premixed ethylene flame. *Combustion and Flame* 162:10 (2015), 3810–3822 (cf. p. 78).
- [13] CELNIK, M., PATTERSON, R., KRAFT, M. et WAGNER, W. Coupling a stochastic soot population balance to gas-phase chemistry using operator splitting. *Combustion and Flame* (2007) (cf. p. 4).

- [14] CHARLETTE, F., MENEVEAU, C. et VEYNANTE, D. A power-law flame wrinkling model for LES of premixed turbulent combustion Part I & II. *Combustion and Flame* 131:1-2 (2002), 159–197 (cf. p. 17).
- [15] CHONG, S. T., HASSANALY, M., KOO, H., MUELLER, M. E., RAMAN, V. et GEIGLE, K.-P. Large eddy simulation of pressure and dilution-jet effects on soot formation in a model aircraft swirl combustor. *Combustion and Flame* 192 (2018), 452–472 (cf. p. 98, 100).
- [16] COLIN, O., DUCROS, F., VEYNANTE, D. et POINSOT, T. A thickened flame model for large eddy simulations of turbulent premixed combustion. *Physics of Fluids* 12:7 (2000), 1843–1863 (cf. p. 17).
- [17] DE BERG, M., CHEONG, O., VAN KREVELD, M. et OVERMARS, M. Computational Geometry : Algorithms and Applications. *Computational Geometry*. 2008, 307–322 (cf. p. 70).
- [18] DELAROCHE, A. L'élaboration d'un outil numérique de réduction et d'optimisation des mécanismes cinétiques dans les systèmes de combustion. Thèse de doct. Sorbonne Université, 2018 (cf. p. 16).
- [19] DOBBINS, R. A. Soot inception temperature and the carbonization rate of precursor particles. *Combustion and Flame* 130:3 (2002), 204–214 (cf. p. 56).
- [20] DOREY, L.-H. Modélisation des phénomènes couplés combustion-formation des suies-transferts radiatifs dans les chambres de combustion de turbine à gaz. Thèse de doct. École centrale de Paris, 2012 (cf. p. 1–4, 14, 17, 21, 56, 82, 84, 85, 106, 135).
- [21] DOREY, L. H., BERTIER, N., TESSÉ, L. et DUPOIRIEUX, F. Soot and radiation modeling in laminar ethylene flames with tabulated detailed chemistry. *Comptes Rendus - Mécanique* 339:12 (2011), 756–769 (cf. p. 57, 82, 85).
- [22] DUPOIRIEUX, F., BERTIER, N., GUIN, C., DOREY, L.-H., GEIGLE, K. P., EBERLE, C. et GERLINGER, P. Methodology for the Numerical Prediction of Pollutant Formation in Gas Turbine Combustors and Associated Validation Experiments. *Aerospace Lab* 11 (2016) (cf. p. 98, 100, 104, 130).
- [23] EBERLE, C., GERLINGER, P. et AIGNER, M. A sectional PAH model with reversible PAH chemistry for CFD soot simulations. *Combustion and Flame* 179 (2017), 63–73 (cf. p. 2–4, 28, 35, 37, 38, 47, 85).
- [24] EBERLE, C., GERLINGER, P. M. et AIGNER, M. Large Eddy Simulations of a Sooting Lifted Turbulent Jet-Flame. *55th AIAA Aerospace Sciences Meeting*. AIAA SciTech Forum. American Institute of Aeronautics et Astronautics, 2017 (cf. p. 4, 37).
- [25] EBERLE, C., GERLINGER, P., GEIGLE, K. P. et AIGNER, M. Soot predictions in an aero-engine model combustor at elevated pressure using URANS and finite-rate chemistry. *Combust. Sci. Technol* (2014) (cf. p. 96, 99).
- [26] EBERLE, C., GERLINGER, P., GEIGLE, K. P. et AIGNER, M. Toward finite-rate chemistry large-eddy simulations of sooting swirl flames. *Combustion Science and Technology* 190:7 (2018), 1194–1217 (cf. p. 17, 97, 99, 106).
- [27] FEDE, P., SIMONIN, O. et VILLEDIEU, P. Monte-Carlo simulation of colliding particles or coalescing droplets transported by a turbulent flow in the framework of a joint fluid–particle pdf approach. *International Journal of Multiphase Flow* 74 (2015), 165–183 (cf. p. 57).
- [28] FELDEN, A., RIBER, E. et CUENOT, B. Impact of direct integration of Analytically Reduced Chemistry in LES of a sooting swirled non-premixed combustor. *Combustion and Flame* 191 (2018), 270–286 (cf. p. 3, 97, 99, 100).
- [29] FIORINA, B., VICQUELIN, R., AUZILLON, P., DARABIHA, N., GICQUEL, O. et VEYNANTE, D. A filtered tabulated chemistry model for LES of premixed combustion. *Combustion and Flame* 157:3 (2010), 465–475 (cf. p. 2).

- [30] FIORINA, B, BARON, R, GICQUEL, O, THEVENIN, D, CARPENTIER, S et DARABIHA, N. Modelling Non-Adiabatic Partially Premixed Flames Using Flame-Prolongation of ILDM. *Combustion Theory and Modelling* 7:3 (2003), 449–470 (cf. p. 2, 16).
- [31] FRANZELLI, B, VIÉ, A et DARABIHA, N. A three-equation model for the prediction of soot emissions in LES of gas turbines. *Proceedings of the Combustion Institute* 37:4 (2019), 5411–5419 (cf. p. 3, 97, 99).
- [32] FRANZELLI, B., RIBER, E., SANJOSÉ, M. et POINSOT, T. A two-step chemical scheme for kerosene-air premixed flames. *Combustion and Flame* 157:7 (2010), 1364–1373 (cf. p. 16).
- [33] FRANZELLI, B, RIBER, E, CUENOT, B et IHME, M. *Numerical Modeling of Soot Production in Aero-Engine Combustors Using Large Eddy Simulations*. 2015 (cf. p. 97, 99).
- [34] FRENKLACH, M. et WANG, H. Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation. *Soot Formation in Combustion : Mechanisms and Models*. Sous la dir. de BOCKHORN, H. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1994, 165–192 (cf. p. 1, 37).
- [35] FRENKLACH, M. et WANG, H. Detailed modeling of soot particle nucleation and growth. *Symposium (International) on Combustion* 23:1 (1991), 1559–1566 (cf. p. 28, 46).
- [36] FUCHS, N. A. *The mechanics of aerosols*. Oxford : Pergamon Press, 1964, 408 (cf. p. 47).
- [37] GAFFIÉ, D., TESSÉ, L., LAMET, J. M., DOREY, L.-H., BERTIER, N., CUENOT, B., RIBER, E., EL HAFI, M., EYMET, V et ANDRÉ, F. *Projet ANR SMART-LECT - Rapport final à T0 + 48 mois*. Rapp. tech. 2012 (cf. p. 135).
- [38] GALLEN, L., FELDEN, A., RIBER, E. et CUENOT, B. Lagrangian tracking of soot particles in LES of gas turbines. *Proceedings of the Combustion Institute* (2018) (cf. p. 4, 98).
- [39] GEAR, C. W. *Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations*. Upper Saddle River, NJ, USA : Prentice Hall PTR, 1971 (cf. p. 19, 32).
- [40] GEIGLE, K. P. et HAWORTH, D. Pressurized Flames and Sprays. *Proceedings of the Third International Sooting Flame (ISF) Workshop*. 2016, 153–190 (cf. p. 106).
- [41] GEIGLE, K. P., HADEF, R., STÖHR, M. et MEIER, W. Flow field characterization of pressurized sooting swirl flames and relation to soot distributions. *Proceedings of the Combustion Institute* (2017) (cf. p. 94, 96).
- [42] GEIGLE, K. P., KÖHLER, M., O’LOUGHLIN, W. et MEIER, W. Investigation of soot formation in pressurized swirl flames by laser measurements of temperature, flame structures and soot concentrations. *Proceedings of the Combustion Institute* 35:3 (2015), 3373–3380 (cf. p. 94, 96).
- [43] GEIGLE, K. P., HADEF, R. et MEIER, W. Soot Formation and Flame Characterization of an Aero-Engine Model Combustor Burning Ethylene at Elevated Pressure. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power* 136:2 (2014), 021505 (cf. p. 94, 95, 99, 104).
- [44] GEIGLE, K. P., O’LOUGHLIN, W., HADEF, R. et MEIER, W. Visualization of soot inception in turbulent pressurized flames by simultaneous measurement of laser-induced fluorescence of polycyclic aromatic hydrocarbons and laser-induced incandescence, and correlation to OH distributions. *Applied Physics B : Lasers and Optics* (2015) (cf. p. 94, 96).
- [45] GERLINGER, P., GEIGLE, K. P. et AIGNER, M. Numerical Investigation of Transient Soot Evolution Processes in an Aero-Engine Model Combustor AU - Eberle, Christian. *Combustion Science and Technology* 187:12 (2015), 1841–1866 (cf. p. 96).
- [46] GICQUEL, O., DARABIHA, N. et THÉVENIN, D. Laminar premixed hydrogen/air counterflow flame simulations using flame prolongation of ILDM with differential diffusion. *Proceedings of the Combustion Institute* 28:2 (2000), 1901–1908 (cf. p. 16).
- [47] GILBERT, R. G., LUTHER, K et TROE, J. Theory of Thermal Unimolecular Reactions in the Fall-off Range. II. Weak Collision Rate Constants. *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie* 87:2 (1983), 169–177 (cf. p. 28).

- [48] GOODWIN, D. G., MOFFAT, H. K. et SPETH, R. L. *Cantera : An Object-oriented Software Toolkit for Chemical Kinetics, Thermodynamics, and Transport Processes*. <http://www.cantera.org>. 2016 (cf. p. 31).
- [49] GRADER, M., EBERLE, C., GERLINGER, P. et AIGNER, M. *LES of a Pressurized, Sooting Aero-Engine Model Combustor at Different Equivalence Ratios With a Sectional Approach for PAHs and Soot*. 2018 (cf. p. 37, 97, 99, 130).
- [50] HAIDER, F. Discretization on general unstructured grids and applications on LES. Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2009 (cf. p. 17, 33, 83, 105).
- [51] HARRIS, S. J. et KENNEDY, I. M. The Coagulation of Soot Particles with van der Waals Forces. *Combustion Science and Technology* 59:4-6 (1988), 443–454 (cf. p. 47).
- [52] HIRSCHFELDER, J., BIRD, R. B. et CURTISS, C. F. *Molecular theory of gases and liquids* (1964) (cf. p. 84).
- [53] HYLKEMA, J et VILLEDIEU, P. A random particle method to simulate coalescence phenomena in dense liquid sprays. *Sixteenth International Conference on Numerical Methods in Fluid Dynamics*. Sous la dir. de BRUNEAU, C.-H. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1998, 488–493 (cf. p. 58, 59).
- [54] HYLKEMA, J. J. Modélisation cinétique et simulation numérique d'un brouillard dense de gouttelettes : application aux propulseurs à poudre. Thèse de doct. 1999 (cf. p. 21, 57).
- [55] INTERNATIONAL CIVIL AVIATION ORGANIZATION (ICAO). *ICAO Environmental Report 2013*. Rapp. tech. 2013 (cf. p. 1).
- [56] INTERNATIONAL CIVIL AVIATION ORGANIZATION (ICAO). *ICAO Environmental Report 2016*. Rapp. tech. 2016 (cf. p. 1).
- [57] KAZAKOV, A., WANG, H. et FRENKLACH, M. Detailed modeling of soot formation in laminar pre-mixed ethylene flames at a pressure of 10 bar. *Combustion and Flame* 100:1-2 (1995), 111–120 (cf. p. 46).
- [58] KOLMOGOROV, A. N. Dissipation of Energy in the Locally Isotropic Turbulence. *Proceedings : Mathematical and Physical Sciences* 434:1890 (1991), 15–17 (cf. p. 11).
- [59] KONSUR, B., MEGARIDIS, C. M. et GRIFFIN, D. W. Fuel preheat effects on soot-field structure in laminar gas jet diffusion flames burning in 0-g and 1-g. *Combustion and Flame* 116:3 (1999), 334–347 (cf. p. 84).
- [60] KOO, H., HASSANALY, M., RAMAN, V., MUELLER, M. E. et GEIGLE, K. P. Large Eddy Simulation of Soot Formation in a Model Gas Turbine Combustor. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power* (2016) (cf. p. 98).
- [61] KOTALCZYK, G. et KRUIS, F. A Monte Carlo method for the simulation of coagulation and nucleation based on weighted particles and the concepts of stochastic resolution and merging. *Journal of Computational Physics* 340 (2017), 276–296 (cf. p. 70).
- [62] LE TOUZE, C. Couplage entre modèles diphasiques à phases séparées et à phase dispersée pour la simulation de l'atomisation primaire en combustion cryotechnique. Thèse de doct. Université Nice Sophia Antipolis, 2015 (cf. p. 11, 17, 20, 21).
- [63] LEGIER, J. P., POINSOT, T. et VEYNANTE, D. Dynamically thickened flame LES model for pre-mixed and non-premixed turbulent combustion. *Proceedings of the Summer Program, Centre for Turbulence Research* (2000), 157–168 (cf. p. 17).
- [64] LEHTINEN KARI, E. J. Theoretical studies on aerosol agglomeration processes. *VTT Publications* (1997) (cf. p. 57).
- [65] LESIEUR, M. et MANKBADI, R. R. Turbulence in Fluids. *Journal of Applied Mechanics* (2009) (cf. p. 11).

- [66] LETERRIER, N. Discrétisation spatiale en maillage non-structuré de type général. Thèse de doct. Université Pierre et Marie Curie, 2003 (cf. p. 17).
- [67] LEUNG, K. M., LINDSTEDT, R. P. et JONES, W. P. A simplified reaction mechanism for soot formation in nonpremixed flames. *Combustion and Flame* 87:3-4 (1991), 289–305 (cf. p. 2, 3, 98).
- [68] LINDEMANN, F. A., ARRHENIUS, S., LANGMUIR, I., DHAR, N. R., PERRIN, J et McC. LEWIS, W. C. Discussion on “the radiation theory of chemical action”. *Transactions of the Faraday Society* 17:0 (1922), 598–606 (cf. p. 28).
- [69] LØVÅS, T., AMNÉUS, P., MAUSS, F. et MASTORAKOS, E. Comparison of automatic reduction procedures for ignition chemistry. *Proceedings of the Combustion Institute* 29:1 (2002), 1387–1393 (cf. p. 29, 108).
- [70] LU, T. et LAW, C. K. A criterion based on computational singular perturbation for the identification of quasi steady state species : A reduced mechanism for methane oxidation with NO chemistry. *Combustion and Flame* 154:4 (2008), 761–774 (cf. p. 32).
- [71] LU, T. et LAW, C. K. Systematic approach to obtain analytic solutions of quasi steady state species in reduced mechanisms. *Journal of Physical Chemistry A* 110:49 (2006), 13202–13208 (cf. p. 30, 31, 109).
- [72] MAGNUSSEN, B. et HJERTAGER, B. On mathematical modeling of turbulent combustion with special emphasis on soot formation and combustion. *Symposium (International) on Combustion* 16:1 (1977), 719–729 (cf. p. 2, 3).
- [73] McBRIDE, B., GORDON, S. et RENO, M. Coefficients for Calculating Thermodynamic and Transport Properties of Individual Species. *Nasa Technical Memorandum* 4513:NASA-TM-4513 (1993), 98 (cf. p. 10).
- [74] MOSS, J. B. Modelling Soot Formation for Turbulent Flame Prediction. *Soot Formation in Combustion : Mechanisms and Models*. Sous la dir. de BOCKHORN, H. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1994, 551–568 (cf. p. 3).
- [75] MUELLER, M. E., BLANQUART, G. et PITSCH, H. Hybrid Method of Moments for modeling soot formation and growth. *Combustion and Flame* 156:6 (2009), 1143–1155 (cf. p. 2, 3, 35, 60).
- [76] MURRONE, A. et VILLEDIEU, P. Numerical modeling of dispersed two-phase flows. *Aerospace Lab* 2 (2011), 1–13 (cf. p. 19–21, 57, 59).
- [77] NAU, P., YIN, Z., GEIGLE, K. P. et MEIER, W. Wall temperature measurements at elevated pressures and high temperatures in sooting flames in a gas turbine model combustor. *Applied Physics B* 123:12 (2017), 279 (cf. p. 96, 104).
- [78] NEOH, K. G., HOWARD, J. B. et SAROFIM, A. F. Soot Oxidation in Flames. *Particulate Carbon : Formation During Combustion*. Sous la dir. de SIEGLA, D. C. et SMITH, G. W. Boston, MA : Springer US, 1981, 261–282 (cf. p. 2, 47).
- [79] ONERA. *Manuel théorique de la chaîne CEDRE*. Rapp. tech. 2018 (cf. p. 13, 106).
- [80] ONG, J. C., PANG, K. M., WALTHER, J. H., HO, J.-H. et NG, H. K. Evaluation of a Lagrangian Soot Tracking Method for the prediction of primary soot particle size under engine-like conditions. *Journal of Aerosol Science* 115 (2018), 70–95 (cf. p. 4).
- [81] PEPIOT, P. Automatic strategies to model transportation fuel surrogates. Thèse de doct. Stanford University, 2008 (cf. p. 29, 108).
- [82] PETERS, N. *Turbulent Combustion*. T. 125. 2000, 304 (cf. p. 15).
- [83] PIERCE, C. D. et MOIN, P. Progress-variable approach for large eddy simulation of non-premixed turbulent combustion. *J fluid mechanics* 404:2004 (2010), 73 (cf. p. 15).
- [84] POINSOT, T. et VEYNANTE, D. *Theoretical and Numerical Combustion*. 3<sup>e</sup> éd. Bordeaux : Edited by the authors, 2005 (cf. p. 14, 16).

- [85] POPE, S. B. *Turbulent Flows*. T. 1. 2000, 771 (cf. p. 11).
- [86] REFLOCH, A, COURBET, B, MURRONE, A, VILLEDIEU, P, LAURENT, C, GILBANK, P, TROYES, J, TESSÉ, L, CHAINERAY, G, DARGAUD, J. *et al.* CEDRE software. *AerospaceLab 2* (2011) (cf. p. 8).
- [87] RICHARDSON, L. F. *Weather Prediction by Numerical Process*. 2nd. Cambridge University Press, 2007 (cf. p. 11).
- [88] RICHTER, H., GRANATA, S., GREEN, W. H. et HOWARD, J. B. Detailed modeling of PAH and soot formation in a laminar premixed benzene/oxygen/argon low-pressure flame. *Proceedings of the Combustion Institute* 30:1 (2005), 1397–1405 (cf. p. 4, 37).
- [89] RIVIÈRE, P. et SOUFIANI, A. Updated band model parameters for H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and CO radiation at high temperature. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 55:13-14 (2012), 3349–3358 (cf. p. 135).
- [90] RODRIGUES, P. Modélisation multiphysique de flammes turbulentes suitées avec la prise en compte des transferts radiatifs et des transferts de chaleur pariétaux. Thèse de doct. CentraleSupélec, 2018 (cf. p. 1–4, 85, 97, 122).
- [91] SAGAUT, P. *Large Eddy Simulation for Incompressible Flows : An Introduction*. Springer, 2005 (cf. p. 13).
- [92] SAGGESE, C., FERRARIO, S., CAMACHO, J., CUOCI, A., FRASSOLDATI, A., RANZI, E., WANG, H. et FARAVELLI, T. Kinetic modeling of particle size distribution of soot in a premixed burner-stabilized stagnation ethylene flame. *Combustion and Flame* 162:9 (2015), 3356–3369 (cf. p. 2, 4, 35).
- [93] SAINTE-ROSE, B. Simulations numériques d'écoulements réactifs massivement décollés par une approche hybride RANS/LES. Thèse de doct. École Centrale Paris, 2010 (cf. p. 19).
- [94] SAVRE, J. Simulation numérique instationnaire de la combustion turbulente au sein de foyers aéronautiques et prédiction des émissions polluantes. Thèse de doct. INSA Rouen, 2010 (cf. p. 8).
- [95] SCHERRER, D. *PEA APTE : Travaux de modélisation et de simulations numériques avec le code CEDRE - Rapport technique RT 1/17312*. Rapp. tech. 2010 (cf. p. 17, 33, 105).
- [96] SELVA, G. Méthodes itératives pour l'intégration implicite des équations de l'aérothermochimie sur des maillages non-structurés. Thèse de doct. École Centrale de Paris, 1998 (cf. p. 19).
- [97] SIRIGNANO, M. et BLANQUART, G. Laminar Flames Session. *Proceedings of the Third International Sooting Flame (ISF) Workshop*. 2016, 248–290 (cf. p. 83).
- [98] SRIVASTAVA, S. *Operator Splitting Methods for the Advection-Diffusion-Reaction Equation*. Rapp. tech. Technische Universiteit Eindhoven, 2015 (cf. p. 48).
- [99] SUTHERLAND, W. The viscosity of gases and molecular force. *Philosophical Magazine Series 5* (1893) (cf. p. 9, 34).
- [100] TAINÉ, J., ENGUEHARD, F. et IACONA, E. *Transferts thermiques, Introduction aux transferts d'énergie*. 2012 (cf. p. 135).
- [101] TESSÉ, L. Modélisation des transferts radiatifs dans les flammes turbulentes par une méthode de Monte Carlo. Thèse de doct. École centrale de Paris, 2001 (cf. p. 135).
- [102] TESSÉ, L. et LAMET, J. M. Radiative Transfer Modeling Developed at Onera for Numerical Simulations of Reactive Flows. *AerospaceLab 2* (2011) (cf. p. 135).
- [103] TORO, E. *Riemann solvers and numerical methods for fluid dynamics*. 2009, 724 (cf. p. 17, 33, 83, 105).
- [104] TROTTER, H. F. On the Product of Semi-Groups of Operators. *Proceedings of the American Mathematical Society* 10:4 (1959), 545–551 (cf. p. 36, 48).
- [105] VERHOEVEN, L. M., RAMAEKERS, W. J. S., van OIJEN, J. A. et DE GOEY, P. H. Modeling non-premixed laminar co-flow flames using flamelet-generated manifolds. *Combustion and Flame* 159:1 (2012), 230–241 (cf. p. 15).

- [106] VERVISCH, L., HAUGUEL, R., DOMINGO, P. et RULLAUD, M. Three facets of turbulent combustion modelling : DNS of premixed V-flame, LES of lifted nonpremixed flame and RANS of jet-flame. *Journal of Turbulence* 5:September 2014 (2004), 37–41 (cf. p. 17).
- [107] WANG, H. et FRENKLACH, M. A detailed kinetic modeling study of aromatics formation in laminar premixed acetylene and ethylene flames. *Combustion and Flame* 110:1-2 (1997), 173–221 (cf. p. 2).
- [108] WICK, A., PRIESACK, F. et PITTSCH, H. Large-eddy simulation and detailed modeling of soot evolution in a model aero engine combustor. *ASME Turbo Expo 2017 : Turbomachinery Technical Conference and Exposition*. American Society of Mechanical Engineers. 2017 (cf. p. 98, 100).
- [109] WILKE, C. R. A viscosity equation for gas mixtures. *The Journal of Chemical Physics* (1950) (cf. p. 33).
- [110] WILLIAMS, F. A. Spray Combustion and Atomization. *Physics of Fluids* 1:6 (1958), 541 (cf. p. 20).
- [111] XU, F., SUNDERLAND, P. B. et FAETH, G. M. Soot formation in laminar premixed ethylene/air flames at atmospheric pressure. *Combustion and Flame* 108:4 (1997), 471–493 (cf. p. 82, 83).
- [112] XU, F., EL-LEATHY, A., KIM, C. et FAETH, G. Soot surface oxidation in hydrocarbon/air diffusion flames at atmospheric pressure. *Combustion and Flame* 132:1-2 (2003), 43–57 (cf. p. 56).
- [113] YU, J., SUMATHI, R. et GREEN, W. H. Accurate and Efficient Method for Predicting Thermochemistry of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons - Bond-Centered Group Additivity. *Journal of the American Chemical Society* 126:39 (2004), 12685–12700 (cf. p. 37).
- [114] ZAMUNER, B. et DUPOIRIEUX, F. Numerical Simulation of Soot Formation in a Turbulent Flame with a Monte-Carlo PDF Approach and Detailed Chemistry. *Combustion Science and Technology* 158:1 (2000), 407–438 (cf. p. 3, 4, 38).





## **Modélisation de la formation et de l'évolution des particules de suie en approche hybride Euler-Lagrange pour la simulation de foyers aéronautiques**

### Résumé :

Les suies représentent un enjeu important pour la conception des foyers aéronautiques. Une nouvelle réglementation de leurs émissions doit en effet entrer en vigueur en 2020. Aussi, les suies modifient les transferts radiatifs en leur sein affectant la charge thermique aux parois et la formation des NOx. Prédire précisément et efficacement la formation et l'évolution des particules de suie est cependant une question toujours ouverte en CFD. Ce travail propose de combiner une description eulérienne des précurseurs de suie et une description lagrangienne de l'évolution des particules, celle-ci étant bien adaptée au suivi de l'évolution de leur distribution en taille. La croissance des hydrocarbures aromatiques polycycliques est modélisée par une méthode sectionnelle pour calculer le taux de nucléation de suies et créer les particules suivies dans l'écoulement. Ces dernières sont modélisées par des sphères interagissant avec le gaz et, pour les plus jeunes, entre elles par coalescence selon leur diamètre. La méthode est implantée dans le code CEDRE et associée à une procédure de réduction du nombre de particules pour en contrôler le coût de convergence statistique. Appliquée à des flammes laminaires stationnaires de prémélange C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>-air, elle est confrontée à des mesures de composition, fraction volumique de suie et diamètre des particules avec succès. La méthode est utilisée, avec l'Approximation de l'État Quasi-Stationnaire appliquée à la chimie du gaz, pour simuler une flamme turbulente pressurisée C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>-air analogue aux configurations RQL des foyers aéronautiques, et confrontée à des mesures de fraction volumique de suie, vitesse, température et composition avec succès.

Mots clés : CFD ; combustion ; suie ; description lagrangienne ; PAH ; méthode sectionnelle

## **Hybrid eulerian-lagrangian modelling of soot particles nucleation and evolution for the simulation of aeronautical combustors**

### Abstract:

Soot has become an important issue in the design of aeroengine combustors. New certifications on soot particles are to be applied in 2020 due to growing concern about pollutant emissions in the transportation industry. Soot particles also modify radiative heat transfers in combustion chambers affecting thermal load at walls and NOx formation. Still, efficient and accurate prediction of soot particles formation and evolution is an open field in CFD. This manuscript proposes to combine an Eulerian description of soot precursors and a Lagrangian description of particles evolution, which has the advantage to be well suited to follow the evolution of the particle size distribution. The growth of polycyclic aromatic hydrocarbons is modelled by a sectional method to obtain the soot inception rate and create the particles tracked in the gas flow. The particles are described as spheres interacting with the gas through chemical processes and between each other by coalescence, bounded to young liquid-like particles depending on their diameter. The method is implemented in the CEDRE code and completed by an algorithm for the reduction of the particles population to limit the cost of its statistical convergence. Applied to steady laminar premixed C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>-air flames, it is confronted with some success to measurements of soot volume fraction, particle diameter and species molar fractions. The method is then applied combined with the Quasi-Steady State Approximation for gas chemistry to a swirled pressurized C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>-air flame, similar to RQL configurations of aeroengine combustors, and confronted with some success to velocity, temperature, composition and soot volume fraction measurements.

Keywords: CFD; combustion; soot; Lagrangian description; PAH; sectional method