

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

**UNIVERSITE D'OUM EL BOUAGHI**

Faculté : Sciences et des Sciences Appliquées

Département De Génie Mécanique



## Thèse

POUR OBTENIR LE DIPLOME DE

### Doctorat 3ème Cycle

Filière : Génie Mécanique

Spécialité : Energétique

Thème :

---

### **Modélisation et quantification des particules de suies dans la combustion d'un combustible à bas pouvoir calorifique**

Présenté Par :

**BRAKCHI Mohamed Seghaier**

Thèse soutenue le 14 / 10 / 2024 devant le jury composé de :

N°	Nom et prénom	Grade	Etablissement	Qualité
01	BORDJA Lyes	Prof.	Univ- Oum El Bouaghi	Président
02	HADEF Amar	Prof.	Univ- Oum El Bouaghi	Rapporteur
03	MAMERI Abdel Baki	Prof.	Univ- Oum El Bouaghi	Co-rapporteur
04	HARNANE Yamina	MCA	Univ- Oum El Bouaghi	Examineur
05	ADOUANE Belkacem	Prof.	Univ Batna-1-	Examineur
06	ALLICHE Mounir	Prof.	Univ Medea	Examineur

## Résumé

Le but de ce travail est d'étudier la composition d'un mélange éthylène/syngas suivant des paramètres tel que, variation de l'hydrogène et le CO dans le mélange, taux de déformation et l'impact chimique du H<sub>2</sub> et du CO sur la structure interne de la flamme, ainsi que l'impact de la pression et de la radiation sur la formation de la flamme et la formation de suie dans une configuration à jet opposé. La chimie en phase gazeuse est couplée selon le modèle des suies à base d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), par la méthode du moment et la cinétique chimique de ce système est décrite par le mécanisme ABF.

Il s'avère que l'augmentation de H<sub>2</sub> déplace le front de flamme vers le côté combustible, alors que la diminution de l'épaisseur de la flamme est induite par l'augmentation du taux de déformation et ce dernier réduit la dissociation de C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>. La suie est considérablement réduite avec l'augmentation de la quantité d'hydrogène dans le carburant et le taux de déformation. Les effets chimiques de H<sub>2</sub> et CO jouent un rôle important dans la réduction de la température maximale de la flamme et de la formation de suie. Les effets chimiques de H<sub>2</sub> et CO ont un impact significatif sur la diminution de la température maximale de la flamme et la production de suie, alors que l'effet de la pression est opposé à celui de la vitesse de déformation.

**Mots clés :** configuration à jet opposé ; taux de déformation ; la formation de suie ; Les effets chimiques

## Sommaire

Résumé.....	i
Sommaire.....	ii
Liste des figures et tableaux .....	iv
Remerciements.....	ii
<b>Chapitre 1 : Introduction .....</b>	<b>01</b>
<b>Chapitre 2 : Flamme laminaire et Mise en Equations.....</b>	<b>05</b>
2.1 Introduction .....	05
2.2 Les type de flammes .....	05
2.2.1. La flamme pré mélangé .....	05
2.2.2. La flamme non pré mélangé ou la flamme de diffusion.....	06
2.3. Analyse des flammes de diffusion laminaire à jet opposé .....	08
2.4. Structure d'une flamme de diffusion laminaire .....	10
2.5. Equations des mélanges réactifs gazeux .....	11
2.5.1. Paramètres d'étude .....	11
2.5.2. Variables thermodynamiques .....	12
2.5.3. Formulation mathématique des flammes de diffusion laminaires à jet opposés ...	14
2.5.3.1. L'équation de conservation de la masse .....	15
2.5.3.2. L'équation de conservation des espèces .....	16
2.5.3.3. L'équation de conservation de l'énergie .....	17
2.5.4. La cinétique chimique .....	18
2.5.4.1. Réactions et mécanismes réactionnels .....	19
2.5.4.2. Constante d'équilibre .....	20
<b>Chapitre 03 : Modélisation de la formation de suies</b>	
<b>3.1 Introduction .....</b>	<b>22</b>
3.2. Formation de précurseurs de suie (la phase gaze) .....	23

3.2.1. La première voie $C_4+C_2$ .....	24
3.2.2. La deuxième voie $C_3+C_3$ .....	24
3.2.3. La troisième voie $C_5+C_1$ .....	25
3.3. Le mécanisme HACA .....	25
3.4. La développement et l'oxydation des particules de suies .....	26
3.4.1. Nucléation .....	28
3.4.2. Condensation et Croissance de surface .....	29
3.4.3. Coagulation et agglomération .....	29
3.4.4. Oxydation des particules suies .....	30
3.5. Dérivés des HAP : impacts sur l'environnement et la santé .....	31
3.6. Modélisation de la formation de suie .....	31
<b>Chapitre 04 : Résultat et discussion</b>	
4.1. Description du problème, conditions aux limites et validation .....	36
4.2. L'effet de $H_2$ et du taux de déformation sur la température de la combustion.....	40
4.3. Les effets de la composition du combustible sur la structure de flamme et la formation de suie à différents taux de déformation .....	41
4.4. L'effet du rayonnement sur la structure de flamme et la formation de suie .....	45
4.5 Formation de suie .....	47
4.6 La fraction volumique de suie .....	50
4.7 L'effet de pression sur la structure de flamme et la formation de suie .....	51
4.8 L'effet chimique de l'hydrogène sur la température et la formation de suie ....	57
<b>Conclusion .....</b>	<b>59</b>
<b>Références .....</b>	<b>61</b>

## Liste des figures

Figure.2.1 : Structure d'une flamme de pré mélangé. ....	6
Figure.2.2 : Structure d'une flamme de non pré mélangé .....	7
Figure.2.3 : Schémas des flammes non-pré mélangées à contre-courant .....	9
Figure. 2.4 : Structure interne d'une flamme de diffusion .....	10
Figure. 2.5 : Géométrie d'un jet-opposés axisymétrique .....	15
Figure.2.6 : Flamme de diffusion .....	18
Figure.3.1 : Structure fondamentale d'une particule de suie automobile .....	22
Figure.3.2 : Structure interne d'une particule de suie diesel, d'après .....	23
Figure.3.3 : Modèle de séquence HACA [Frenklach et Wang, 1994].....	26
Figure.3.4 : Les étapes nécessaires à la formation de la suie [Bockhorn, 1994].....	28
Figure.3.5 : Phénomène de croissance de surface .....	29
Figure.4.1 : Température et profils des espèces (résultats expérimentaux (symboles) et prédiction (lignes)). .....	39
Figure 4. 2 : variation de température de combustion en fonction de $a$ et de $H_2$ .....	41
Figure 4. 3 : les effets de la composition du combustible sur la structure de flamme à différents $a(s^{-1})$ .....	42

Figure 4. 4 : Les effets de la composition du combustible sur la formation de suie à différents  $a$  ( $s^{-1}$ ) .....44

Figure 4.5 : l'effet du rayonnement sur la température de flamme pour différent taux de déformation. ....45

Figure 4. 6 : l'effet du rayonnement sur la fraction molaire maximale de H pour différent taux de déformation. .... 46

Figure 4. 7 : l'effet du rayonnement sur YOH à différents taux de déformation et de mélanges. ....46

Figure 4. 8 : l'effet du rayonnement sur  $YC_2H_2$  à différents taux de déformation .....47

Figure 4. 9 : l'effet du rayonnement sur  $YC_3H_3$  à différents taux de déformation. ....48

Figure 4. 10 : l'effet du rayonnement sur la fraction molaire de A1 pour différents taux de déformation. ....49

Figure 4. 11 : l'effet du rayonnement sur la fraction molaire de A4 pour différents taux de déformation ..... 50

Figure 4. 12 : l'effet du rayonnement sur la fraction volumique de suie à différents taux de déformation et de mélanges.....51

Figure 4. 13 : les variations de température (a) et de fraction molaire de H (b), OH (c) pour différentes pressions. ....52

Figure 4 .14 : Variations des valeurs maximales de température (a) et de fraction molaire de H (b), OH (c) pour différentes pressions et quantité de  $H_2$  dans le combustible. ....53

Figure 4.15 : les variations de fraction molaire de  $C_2H_2$  (a) et  $C_3H_3$  (b) pour différentes pressions. .... 54

Figure 4.16: les variations des valeurs maximales de fraction molaire de  $C_2H_2$  (a) et  $C_3H_3$  (b) pour différentes pressions en fonction de  $H_2$  dans le combustible. ....55

Figure 4.17: les variations de fraction molaire de A1 (a) et A2 (b), A4 (c) et la fraction volumique de suie (d) pour différentes pressions. ....55

Figure 4.18: les variations des valeurs maximales de fraction molaire de A1 (a) et A2 (b), A4 (c) et la fraction volumique de suie (d) pour différentes pressions en fonction de  $H_2$  dans le combustible. ....56

Figure 4.19: Effet chimique de  $H_2$  ajouté au combustible sur température de la flamme et formation de suie ..... 58

## Liste de tableaux

**Tableau 3.1** : Structure des particules de suie Diesel (pourcentages massiques) ..... 22

**Tableau 4.1** : composition du mélange .....37

## Remerciement

Je tiens tout d'abord à exprimer ma gratitude envers le bon Dieu qui nous a apporté son aide et nous a permis de mener à bien cette tâche. Je tiens également à remercier le Pr. Hadeb Amar qui a accepté de m'accompagner, de me soutenir et de me prodiguer des conseils tout au long de cette tâche.

Je souhaite exprimer ma profonde reconnaissance et ma gratitude envers les professeurs qui m'ont enseigné pour l'obtention de ma licence et de mon master, ainsi que pendant ma formation doctorale.

J'exprime ma sincère gratitude envers les membres du jury pour leur consentement à évaluer notre travail.

Je tiens également à exprimer ma gratitude envers ma famille pour leur soutien pendant les moments difficiles et leurs encouragements.

Enfin, j'exprime ma gratitude et ma sincère sympathie envers tous ceux qui m'ont soutenu et encouragé dans la réalisation de ce manuscrit.

## 1.Introduction

La croissance rapide de la population et l'industrialisation des pays en développement devraient augmenter la demande énergétique mondiale dans les décennies à venir. La consommation d'énergie devrait augmenter de 30 % d'ici 2040, malgré la constante amélioration des techniques d'exploitation de l'énergie [1]. Les combustibles conventionnels à base de pétrole devraient encore jouer un rôle majeur dans un avenir prévisible, malgré le fait que les sources d'énergie alternatives, notamment l'énergie éolienne, solaire, géothermique et nucléaire, représentent une part de plus en plus importante de la palette énergétique mondiale. Cela est particulièrement vrai dans le domaine des transports, où la société dépend fortement des moteurs à combustion interne alimentés au gaz naturel, à l'essence, au kérosène et au diesel. A noter que les moteurs thermiques utilisent 70 % des 86 millions de barils de pétrole brut que le monde consomme chaque jour [2]. L'utilisation d'hydrocarbures entraîne la formation de nombreux polluants dangereux, notamment le monoxyde d'azote (NO<sub>x</sub>), le monoxyde de carbone (CO), les hydrocarbures imbrûlés (UHC) et le dioxyde de soufre, en plus de contribuer au changement climatique et aux effets de la sécheresse.

La suie représentée est un sous-produit qui se forme suivant un processus de combustion incomplète des hydrocarbures. Ces dernières années, en raison de l'impact de la suie sur la santé humaine et le réchauffement de la planète, son élimination est devenue de la plus haute importance ces dernières années. C'est pourquoi de nombreuses recherches ont été menées sur les causes de la production de suie et sur les méthodes permettant de l'éliminer [3].

Le nombre de phénomènes chimiques et physiques qui contribuent à la formation de la suie n'est pas encore clairement établi. Les combustibles hydrocarbonés sont oxydés pour fabriquer des précurseurs de suie, comme l'acétylène et le propargyle, qui créent l'anneau benzénique dans la zone de flamme. Avant la formation de suie, le mécanisme d'abstraction d'hydrogène-addition de

$C_2H_2$  (HACA), établi par Jörg Appel et al. [4], joue un rôle important dans la croissance des espèces d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).

La distribution axiale des suies n'est pas monotone par rapport à la concentration d'oxygène dans la configuration du jet opposé dans les régions où la présence d'oxygènes est significative. Une étude détaillée du processus de formation de suie a montré que la suppression de l'apparition de suie et l'amélioration du processus d'oxydation de la suie par l'augmentation de XO conduisaient à une diminution de la fraction volumique de suie [5].

Plusieurs travaux ont montré que la dilution du combustible ou du comburent par élément non combustible ( $N_2$ ,  $H_2O$  et Ar) ou combustible tel que ( $H_2$  et CO) affecte la formation de suie par quatre mécanismes importants qui sont l'effet d'atténuation qui modifie le rapport massique total d'oxydation du carburant. Les modifications des propriétés thermiques des réactifs provoquent des effets thermiques et les diluants réactifs subissent des effets chimiques lorsqu'ils participent à des réactions chimiques [6] [7] [8].

L'hydrogène représente le vecteur énergétique le plus propre. Pour améliorer l'efficacité de la flamme et la réduction des polluants, il est largement utilisé comme substance de dopage [9]. Dans des études précédentes, Yang Wang et al. [10] ont étudié l'impact chimique de l'hydrogène sur la formation de suie et analysent les principales voies de formation du benzène ( $C_6H_6$ ) et du pyrène ( $C_{16}H_{10}$ ) pour voir comment l'hydrogène affecte sa composition dans les flammes de méthane et d'éthylène. Ils ont conclu que l'hydrogène ajouté améliore le stockage de la suie dans la flamme de méthane en produisant du H et du  $C_2H_2$ , ce qui entraîne la formation du premier cycle aromatique par le mécanisme HACA. D'autre part, l'ajout d'hydrogène à la flamme de  $C_2H_4$  réduit le taux de nucléation et la croissance de surface de la suie. Une étude expérimentale et une investigation numérique ont été réalisées par Yindi Zhang et al. [11] dans des flammes de diffusion laminaire éthylène/air, avec une variation de la teneur de  $O_2$  dans l'oxydant qui varie de

21 % à 50 % et un remplacement de  $N_2$  par le  $CO_2$  sur la structure interne de la flamme et la formation de suie par le modèle de chimie C2 réalisé par Appel et al. [12].

L'augmentation de la quantité d'oxygène de l'oxydant provoque des températures de flamme élevées et une augmentation rapide de la fraction volumique de suie avec un déplacement vers le centre supérieur. Les effets thermiques et chimiques du  $CO_2$  réduisent la formation de suie. La formation des espèces  $C_2H_2$ ,  $C_6H_6$  et  $C_{16}H_{10}$  sont affectées par le remplacement du  $N_2$  par le  $CO_2$  dans l'oxydant. L'effet de l'hydrogène et de l'azote sur la formation de suie dans une flamme éthylène-air à l'aide du code COFLAME a été réalisé par Andisheh Khanehzar et al [13]. Il a également étudié les divers effets de l'hydrogène chimiques, thermiques et de transport sur la structure de la flamme et la formation de suie. Les résultats indiquaient que l'ajout d'hydrogène et d'azote réduisaient le rayonnement et le volume de suie, et ils ont conclu que le mécanisme de l'HACA et le taux de condensation des HAP étaient responsables de cette diminution.

Les travaux de Fengshan Liu et al. [14] ont montré que l'enrichissement par l'hydrogène affecte principalement la formation de suie par la réaction de  $H_2+O=H+OH$ . La présence de H en abondance affecte directement le mécanisme de formation de la suie via son mécanisme HACA. C'est après avoir apporté une modification au mécanisme ABF afin de mieux prédire la vitesse de réaction. Yaoyao Ying et al. [15] avaient fait une étude détaillée de l'impact chimique de l'hydrogène sur la formation de suie dans une flamme de méthane avec de l'air. Il a conclu que l'ajout d'hydrogène réduit la production d'acétylène ( $C_2H_2$ ) et de ketene ( $CH_2CO$ ) tout en augmentant les concentrations de H, OH et O. Le radical H affecte directement la croissance de la surface de suie à travers le mécanisme HACA. Mingrui Wei et al. [16] ont étudié l'effet de l'addition d'hydrogène sur la formation de suie par trois teneurs (0 %, 20 % et 40 %) en utilisant la méthode de Monte-Carlo pour résoudre le modèle dynamique des particules, la coagulation et la réaction de surface. Les résultats démontrent que les concentrations molaires d'espèces de suie

importantes, telles que le  $C_2H_2$  et les HAP, sont inhibées par l'augmentation de l'hydrogène dans le combustible. En conséquence, la fraction volumique de la suie sera réduite.

Dans la dernière décennie, des recherches ont conclu qu'on peut utiliser le syngas comme source d'hydrogène, alors que le syngas est un biofuel qui se compose principalement de l'hydrogène et du monoxyde de carbone, donc l'addition de ce dernier à un hydrocarbure améliore la qualité de la combustion et réduit les émissions [17]. Une étude expérimentale et une modélisation cinétique d'une flamme de diffusion à contre-courant méthane/éthylène pour déduire l'impact de l'hydrogène sur la formation de suie a été effectué par De Lei Xu et al. [18]. Les résultats obtenus montrent que le rôle de l'effet chimique de l'hydrogène dans la formation des suies dépend non seulement du type de combustible (éthylène ou méthane), mais peut également être sensible à la composition du comburant. Cette thèse est divisée en quatre chapitres :

- Le premier chapitre comprend une introduction et une synthèse des travaux, ainsi que l'objectif de cette étude.
- Le deuxième chapitre Expose des notions sur les flammes, la théorie de la combustion et leurs interactions, ainsi que la méthode de conservation pour les écoulements réactifs laminaires.
- Le troisième chapitre représente la modélisation de la formation de suies ainsi que le choix du mécanisme réactionnel de la formation de suie.
- Le quatrième chapitre définit les caractéristiques et la géométrie de la flamme de diffusion à jets opposés ainsi que l'interprétation de résultats.
- Et finalement le travail se termine par une conclusion.

## 2. Flamme laminaire et Mise en Equations

### 2.1 Introduction

La combustion englobe toutes les réactions chimiques qui surviennent lors de l'oxydation totale ou partielle d'un combustible par un comburant. Ces réactions d'oxydoréduction sont exothermiques dans l'ensemble. Donc, la combustion se produit lorsqu'un combustible est oxydé par un comburant en présence d'une source d'énergie. Elle peut être considérée comme une (ou des) réaction(s) irréversible(s) et elle produit un fort dégagement de chaleur [19].

Il est possible que la combustion se produise en mode flamme ou sans flamme, ce qui classe les flammes en tant que flammes pré mélangées ou flammes non pré mélangées (diffusion).

Les noms des flammes pré mélangées et non pré mélangées suggèrent qu'elles sont liées à l'état de mélange des réactifs.

### 2.2 Les type de flammes

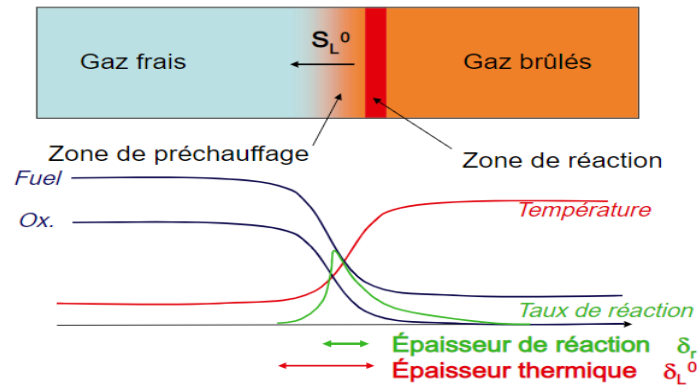
#### 2.2.1. La flamme pré mélangé :

Avant toute réaction chimique majeure, le carburant et le comburant sont mélangés à l'échelle moléculaire.

Une autre définition : le mélange de comburant et de carburant est réalisé avant la combustion, comme le moteur de combustion à allumage commandé, où des flammes pré-mélangées sont présentes.

- **La structure de flamme laminaire pré mélangé :**

Le profil de température à travers une flamme peut être la caractéristique la plus cruciale. Le profil de température de la flamme typique est illustré dans la Fig.2.1, ainsi que d'autres caractéristiques essentielles de la flamme.



**Fig.2.1** : Structure d'une flamme de pré mélangé.[20]..

On peut classer la flamme en trois zones différentes : la première est la zone de préchauffage, où il y a peu de chaleur produite, puis la zone de réaction, où la majorité de l'énergie chimique est libérée [21].

- Zone de préchauffage : correspond à la zone de préchauffage des gaz frais par les gaz brûlés. Dans cette zone, l'effet des réactions chimiques peuvent être négligées en raison des effets de diffusion thermique.
- La zone de réaction, d'une épaisseur de  $\delta_r$ , sépare les gaz frais des gaz brûlés en formant le front de flammes. Les réactions chimiques entraînent un dégagement de chaleur considérable.
- Zone de post-flamme : Dans cette région, les réactions d'oxydation lente et la conversion des espèces intermédiaires en produits sont les principales activités.

### 2.2.2. La flamme non pré mélangé ou la flamme de diffusion :

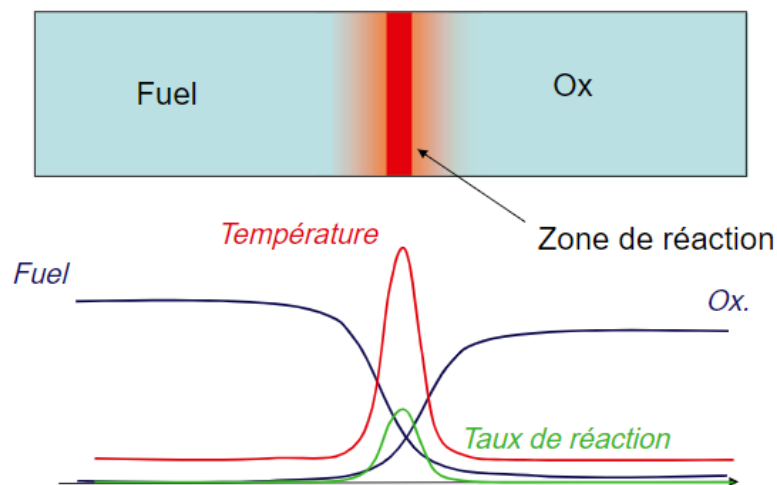
À l'interface entre le combustible et le comburant, les réactifs sont d'abord séparés, provoquant ainsi le mélange et la réaction. Le mot « diffusion » est uniquement utilisé pour désigner la diffusion moléculaire des substances chimiques, c'est-à-dire que les molécules de combustible se

propagent vers la flamme dans une direction et les molécules de comburant dans la direction opposée. Les flammes de diffusion sont formées lorsque le mélange de comburant et de combustible se propage vers la zone réactionnelle.

- **La structure de flamme laminaire non-pré mélangé :**

Les réactifs de ce mode de combustion sont des flux qui se rejoignent par diffusion parmi les différents composants du mélange avant de réagir. La convection et la diffusion libèrent ensuite les produits de combustion. Les profils varient aux différents endroits où les flammes se propagent, contrairement aux flammes de pré mélangé [21]. On observe que la flamme ne se propage pas.

Une représentation schématique de cette flamme est donnée ci-dessous :



**Fig.2.2 :** Structure d'une flamme de non pré mélangé [2.2].

Avant que la réaction ne se produise, il existe un mélange moléculaire entre le carburant et l'oxydant qui alimente la flamme dans la couche de mélange. Cependant, la zone de réaction se trouve au centre de la flamme. C'est là que se produisent les réactions chimiques impliquant les principaux réactifs et produits de combustion, avec un pic des termes sources chimiques et thermiques.

La deuxième et la troisième zone, qui entourent la zone de réaction, constituent la zone de diffusion des espèces. Les réactifs se trouvent de chaque côté de la flamme dans cette région et se combinent avec les produits de combustion grâce à la diffusion moléculaire. La température des gaz augmente progressivement en raison de la diffusion thermique et de la dilution des réactants par les gaz brûlés. Si l'on suppose une diffusion uniforme, les zones de diffusion des espèces et de température se superposent et présentent une symétrie.

Pour conclure, les deux flux de gaz frais qui apportent du carburant et de l'oxydant à la flamme sont situés dans les zones de diffusion. [22].

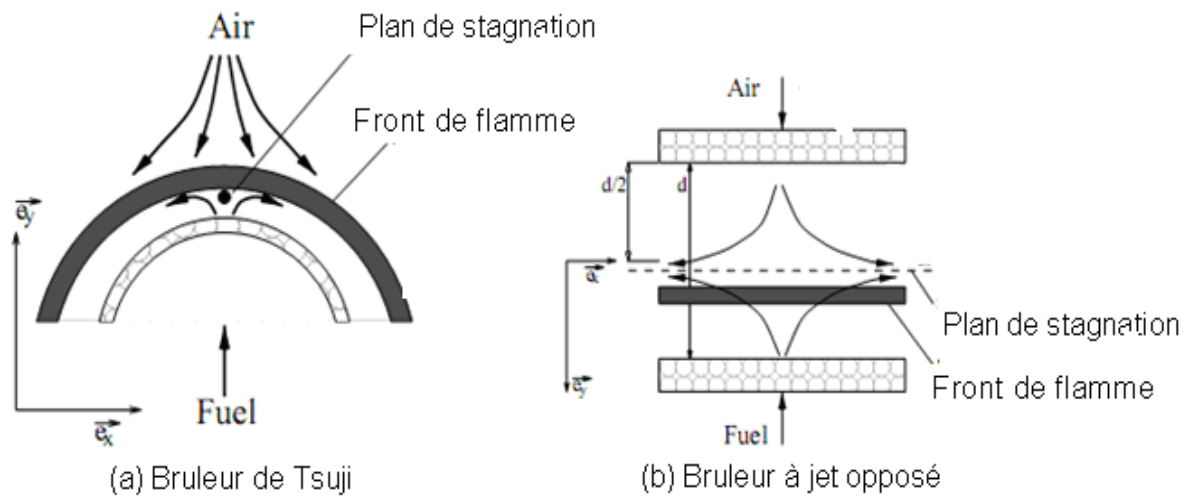
### **2.3. Analyse des flammes de diffusion laminaire à jet opposé**

Depuis plusieurs décennies, de nombreuses études ont été menées sur les flammes de diffusion laminaire, qu'elles soient analytiques, numériques ou expérimentales. Elles constituent une configuration idéale pour confirmer notre compréhension de la combustion. Burk et Schumann [23] ont été les premiers à établir théoriquement le calcul d'une flamme à Jet opposé.

Les flammes de diffusion laminaire sont classées comme des flammes à courant axisymétrique [24] et des flammes à contre-courant, avec des modélisations monodimensionnelles, elles ont un front de flamme courbé (Fig. 2.1) (bruleur de Tsuji : Tsuji et Yamaoka [25] ou plan (bruleurs à jets opposés). Le problème se réduit à une dimension (flamme auto-similaire) en ignorant la diffusion dans la direction orthogonale aux lignes de flux (approximation de Prandtl 1904). Aujourd'hui, la diffusion laminaire des flammes à jets opposés offre un vaste espace de recherche.

D'une part, elles facilitent l'étude physique de la combustion en évitant les problèmes géométriques et en mettant l'accent sur l'étude physique (validation des cinétiques chimiques, comparaison des résultats expérimentaux). D'autre part, elles sont l'élément fondamental d'une

modélisation de la combustion turbulente de certaines théories basées sur le concept de flammelettes. [26].



**Fig.2.3** : Schémas des flammes non-pré mélangées à contre-courant

La flamme s'étire en raison des forces opposées des deux jets qui se rencontrent. Il s'arrête près du plan de stagnation, où les vitesses dans la direction parallèle à l'axe de symétrie  $e_y$  sont nulles, le gradient de vitesse le long de la direction  $e_y$  donne le taux d'étirement local de la flamme. On utilise également le taux d'étirement global, mesuré sur le front de flamme, ce qui est très important, car les deux flammes de diffusion ont le même taux d'étirement avec une structure dynamique similaire. L'inverse du taux d'étirement est appelé le temps de séjour. Il évalue la période pendant laquelle les réactifs demeurent en contact.

Lors des étirements forts et faibles, la flamme est extrêmement exposée aux pertes radiatives. Si l'étirement est très étendu, elle peut être soufflée et s'éteindre, ce qui entraîne une modification significative de la limite d'extinction par le rayonnement.

En revanche, si l'étirement est faible, la flamme s'élargit, ce qui entraîne des pertes d'énergie par transfert radiatif supérieures aux pertes par convection et conduction. [27]. La température d'une flamme à jet opposé de méthane à taux d'étirement faible est fortement influencée par le rayonnement. [28]. Bien que la flamme soit très petite, ces derniers auteurs ont trouvé un domaine

de fonctionnement ou des écarts entre un modèle radiatif mince (négligeant la réabsorption du rayonnement) et un modèle radiatif complet. Par ailleurs, on peut observer dans les articles précités que, dans cette zone instable ou avec des taux d'étirement très faibles, une flamme modélisée avec rayonnement et soumise à l'action d'une baisse des vitesses d'injection des réactifs s'éteint plus difficilement qu'une flamme modélisée sans bilan radiatif. Les arguments sont que la diminution de la température, sous contrainte radiative, affecte les processus convecto-diffusifs, favorise la rencontre des espèces chimiques et augmente le taux d'étirement. Ainsi, pour les mêmes vitesses de jet, une flamme modélisée avec rayonnement a un taux d'étirement plus élevé qu'une flamme modélisée sans rayonnement.

#### 2.4. Structure d'une flamme de diffusion laminaire :

Les réactifs sont séparés d'une flamme de diffusion dans la zone de réaction. La figure 2.2 présente une représentation schématique des profils de fraction massique du combustible, de l'oxydant et de la température. La diffusion moléculaire déplace les réactifs l'un vers l'autre, ce qui justifie le terme de "flamme de diffusion". Les flammes de diffusion sont généralement moins performantes que les flammes pré mélangées en raison de ce transfert de masse qui limite souvent la vitesse de réaction.

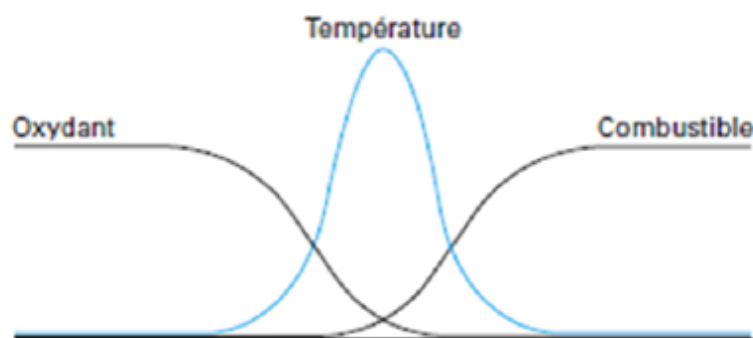


Fig. 2.4 : Structure interne d'une flamme de diffusion

## 2.5. Equations des mélanges réactifs gazeux

La première section de ce chapitre sera dédiée à la définition de paramètres fréquemment utilisés dans les études de combustion, en particulier le retrait, qui est crucial pour l'analyse des flammes laminaires. La deuxième section révisera les équations pour les écoulements de gaz réactifs.

### 2.5.1. Paramètres d'étude

Lorsqu'on étudie un écoulement réactif, il est impératif de définir les variables d'état traditionnels telles que la pression, la température et la vitesse, ainsi que des variables qui décrivent la composition du milieu. À cet effet, chaque substance est identifiée par un indice. Cela permet ensuite de définir la masse de l'espèce de la manière suivante :

$$m_j = n_j M_j \quad 2.1$$

Avec  $M_j$ ,  $n_j$  respectivement la masse molaire et le nombre de moles.

Cela conduit à la détermination de la masse totale, noté  $m$ , qui est :

$$m = \sum_{j=1}^N m_j \quad 2.2$$

$N$  représente le nombre d'espèces composant la masse  $m$ , de même, le nombre de moles total  $n$  est égal à :

$$n = \sum_{j=1}^N n_j \quad 2.3$$

Cette dernière définition nous conduit à l'expression de la masse molaire du mélange :

$$M = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^N n_j M_j \quad 2.4$$

La proportion de l'espèce dans le mélange peut être exprimée soit par la fraction molaire, soit par la fraction massique :

$$x_j = \frac{n_j}{n} \quad 2.5$$

$$y_j = \frac{m_j}{m} \quad 2.6$$

Les deux relations finales, c'est-à-dire (2.5) et (2.6), conduisent automatiquement à la confirmation de l'expression :

$$\sum_{j=1}^N x_j = \sum_{j=1}^N y_j = 1 \quad 2.7$$

Le passage d'un paramètre à l'autre s'effectue au moyen de la relation suivante :

$$y_j = \frac{M_j}{M} x_j \quad 2.8$$

Les chimistes ont une préférence pour l'utilisation de la concentration molaire, car elle rapporte la composition par rapport au volume :

$$c_j = \frac{n_j}{V_T} \quad 2.9$$

Ou bien la masse volumique :

$$\rho_j = \frac{m_j}{V_T} \quad 2.10$$

$V_T$  Représente le volume total du mélange, les valeurs de la concentration molaire globale  $C$  et de la masse volumique totale  $\rho$  sont obtenues à partir des deux relations précédentes :

$$c = \sum_{j=1}^N c_j \quad 2.11$$

$$\rho = \sum_{j=1}^N \rho_j \quad 2.12$$

### 2.5.2. Variables thermodynamiques

Dans cette analyse, le gaz est supposé être idéal, et l'équation d'état est formulée comme suit :

$$PV_T = nRT \quad 2.13$$

$R$  : représente la constante universelle des gaz parfaits, dont la valeur est égale à :

$$R = 8,31 \text{ j/mol.K}$$

L'enthalpie massique du mélange, notée  $h$ , est définie en fonction des enthalpies massiques,  $h_j$ , des espèces composant le mélange par la relation suivante :

$$h = \sum_{j=1}^N y_j h_j \quad \mathbf{2.14}$$

Si l'on suppose que le gaz se comporte de manière idéale, on peut exprimer l'enthalpie massique  $h_j$  en fonction de la température sous la forme suivante :

$$h_j(T) = h_j(T_0) + \int_{T_0}^T C_{p_j}(T) dT \quad \mathbf{2.15}$$

En considérant le gaz comme idéal, les expressions des chaleurs massiques à pression constante  $C_p$  et  $C_{p_j}$  pour une espèce sont données par :

$$C_{p_j} = \left. \frac{\partial h_j}{\partial T} \right|_p \quad \mathbf{2.16}$$

$$C_p = \sum_{j=1}^N y_j C_{p_j} \quad \mathbf{2.17}$$

Selon les équations (2.14) et (2.15), en utilisant les expressions (2.16) et (2.17), l'enthalpie du mélange  $h$  peut être exprimée comme suit :

$$h = \sum_{j=1}^N y_j h_j(T_0) + \int_{T_0}^T C_p(T) dT \quad \mathbf{2.18}$$

Enfin, les propriétés thermodynamiques massiques  $C_p$  et  $h_j$ , qui ont été utilisées pour établir ces relations, sont déduites des propriétés thermodynamiques molaires correspondantes  $C_p$  et  $h_j$  en utilisant les équations suivantes :

$$c_{p_j} = \frac{C_{p_j}}{M_j} \quad \mathbf{2.19}$$

$$h_j = \frac{H_j}{M_j} \quad \mathbf{2.20}$$

Les propriétés thermodynamiques molaires  $C_p$  et  $H_j$  sont estimées à l'aide de polynômes d'approximation.

### 2.5.3. Formulation mathématique des flammes de diffusion laminaires à jet opposés

Les études axisymétriques des flammes de diffusion à contre-courant débutent dans les années cinquante avec Zeldovitch [29], et Spalding [30]. Elles sont suivies dans les années soixante-dix par des calculs numériques de structures de flammes.

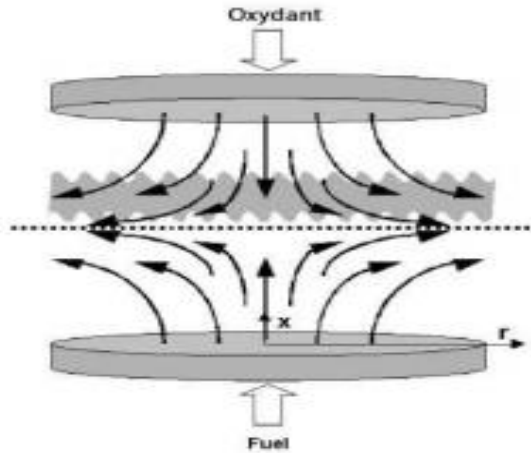
On peut trouver des nombreuses références sur ces flammes dans l'article de synthèse de [Tsuji (1982)] et dans la thèse de [Dangusé(1996)]. Ces études numériques sont indispensables parce qu'elles offrent un bon complément aux mesures expérimentales. On peut citer à titre d'exemple et de manière non exhaustive, les travaux numériques de [Bonne (1971)], [Dixon LEWIS...(1984), et [Blevins...(1998)].

Parmi ces travaux, on distingue ceux à faible étirement et ceux à fort étirement pour lesquels les échelles des temps chimiques les plus importantes deviennent comparables à celles de transport. Ces études concernent plus particulièrement les schémas de réactions chimiques, les transferts radiatifs. Ils ont donc d'abord été traités de manière très simple en étant assimilés à une simple perte globale de chaleur. Cette perte d'énergie par rayonnement se réduisait donc à un paramètre ajustable pouvant prendre des valeurs artificiellement très différentes. Ces modèles furent ensuite remplacés par des modèles de rayonnement optiquement mince donc sans tenir compte de la réabsorption du rayonnement. Il est désormais établi que pour des configurations optiquement épaisses (ou l'absorption du rayonnement est très importante) il est nécessaire d'avoir des modèles à plus grande dynamique spectrale c'est-à-dire reproduisant le plus fidèlement possible toute la complexité des transferts radiatifs. C'est pour une étude plus fine de la structure de la flamme et des limites d'extinction, que certains travaux se sont clairement orientés vers une étude radiative pointue. Plus récemment, ce sont les besoins de comprendre la formation des polluants, ou les conditions de fonctionnement en microgravité qui ont conduit à prendre en compte de manière rigoureuse le transfert radiatif.

La flamme est modélisée comme une flamme de diffusion coaxiale opposée en régime permanent.

### 2.5.3.1. L'équation de conservation de la masse :

Les équations qui gouvernent l'écoulement à jets opposés sont données par Kee et al [31], pour la géométrie de la figure suivante :



**Fig. 2.5** : Géométrie d'un jet-opposés axisymétrique

La direction généralisée représentée par  $\xi$  dans les équations est remplacée par la direction radiale  $r$  dans un écoulement axisymétrique. L'exposant  $n$  prendra la valeur de  $n=3$  pour le cas axisymétrique.

La conservation de masse en coordonnées généralisées dans un écoulement stationnaire est la suivante :

$$\frac{\partial \rho u}{\partial x} + \frac{1}{\xi^{n-2}} \frac{\partial \rho v \xi^{n-2}}{\partial x} = 0 \quad 2.21$$

L'équation pour l'écoulement axisymétrique est :

$$\frac{\partial \rho u}{\partial x} + \frac{1}{r} \frac{\partial \rho v r}{\partial r} = 0 \quad 2.22$$

Où  $u$  et  $v$  sont des composantes de vitesse axiale et radiale,  $\rho$  est la masse volumique, d'après Von Karman qui reconnaît que  $v_\xi/\xi$  et autres variables doivent être fonction de  $x$ , on définit :

$$G(x) = \frac{-\rho u}{\xi} \quad \text{et} \quad F(x) = \frac{\rho u}{n-1} \quad \text{donc :}$$

$$G(x) = \frac{-\rho v}{r} \quad 2.23$$

$$F(x) = \frac{\rho u}{2} \quad 2.24$$

C'est pour cela l'équation (2.2) devient :

$$G(x) = \frac{dF(x)}{dx} \quad 2.25$$

Pour la vitesse axiale  $u$ , puisque  $F$  et  $G$  sont fonction de  $x$ , les variables  $\rho$ ,  $u$ ,  $T$  et  $y_k$  le sont aussi.

L'équation de conservation de la quantité de mouvement est écrite en utilisant les définitions précédentes :

$$H - 2 \frac{d}{dx} \left( \frac{FG}{\rho} \right) + \frac{3G^2}{\rho} + \frac{d}{dx} \left[ \mu \frac{d}{dx} \left( \frac{G}{\rho} \right) \right] = 0 \quad 2.26$$

$$\text{Avec } H = \frac{1}{r} \frac{dp}{dr}$$

### 2.5.3.2. L'équation de conservation des espèces :

L'équation pour la conservation d'une espèce  $i$  dans un mélange réactif est la suivante :

$$\rho u \frac{dY_k}{dx} + \frac{d}{dx} (\rho Y_k V_k) - \dot{\omega} M_k = 0 \quad 2.27$$

Où la formule multi-composante donne la vitesse de diffusion :

$$V_k = \frac{1}{X_k \bar{M}} \sum_{j=1}^k M_j D_k \frac{dX_j}{dx} - \frac{dX_j}{dx} - \frac{D_k^T}{\rho_k T} \frac{dT}{dx} \quad 2.28$$

Ou par la formule du mélange moyen :

$$V_k = \frac{1}{X_k} D_{mk} \frac{dx_k}{dx} - \frac{D_k^T}{\rho_k T} \frac{dT}{dx} \quad 2.29$$

Avec :

$$D_{mk} = \frac{1-Y_k}{\sum_{j \neq k}^k \frac{x_j}{D_{jk}}} \quad 2.30$$

Avec  $D_{ik}$ ,  $D_{mk}$  et  $D_{kT}$  sont respectivement les coefficients de diffusion des espèces multi-composantes, de mélange moyen et les coefficients de la diffusion thermique des espèces.

### 2.5.3.3. L'équation de conservation de l'énergie :

L'équation d'énergie s'écrit ainsi si les pertes par rayonnement et la production de chaleur par combustion sont prises en compte :

$$\rho u \frac{dT}{dx} - \frac{1}{c_p} \frac{d}{dx} \left( \lambda \frac{dT}{dx} \right) + \frac{\rho}{c_p} \sum_k c_{kp} V_k Y_k \frac{dT}{dx} + \frac{1}{c_p} \sum_k h_k \dot{\omega}_k + \frac{\dot{q}_r}{c_p} = 0 \quad 2.31$$

Où le flux radiatif des pertes est donné par :  $\dot{q}_r$ , représente les pertes par rayonnement thermique des espèces CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CO, et CH<sub>4</sub> sont modélisés comme un corps optique mince:

$$\dot{q}_r = -4\sigma k_p (T^4 - T_\infty^4) \quad 2.32$$

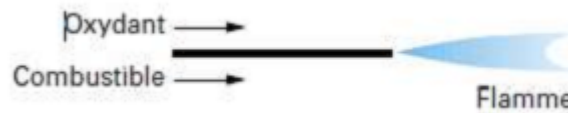
Avec :  $k_p = \sum_{i=1}^4 P_i k_i$  et  $i = \text{CO}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{CO}, \text{CH}_4$

Où  $\sigma = 5,67 \times 10^{-7} \text{Wm}^{-2}\text{K}^{-4}$  est la constante de Stefan-Boltzmann, T et  $T_\infty$  représentent respectivement la température de la substance émettrice de rayonnement et celle du milieu environnant.  $P_i$  représente la pression partielle, tandis que  $K_i$  désigne le coefficient moyen d'absorption de l'espèce i.

Les équations différentielles obtenues ainsi que leurs conditions aux limites sont discrétisées par la méthode des différences finies. L'équation de discrétisation écrite pour chaque nœud du maillage donne un système d'équations linéaires. Ces systèmes sont résolus pour donner la valeur des variables aux nœuds spécifiés. Le programme Oppdiff de Chemkin[32] résout les équations suivant les étapes.

#### 2.5.4. La cinétique chimique :

Dans une flamme de jet non pré mélangée, la cinétique chimique joue un rôle primordial où le mécanisme réactionnel mis en jeu va modifier le développement du jet réactif d'une manière importante.



**Fig.2.6 :** Flamme de diffusion

La thermodynamique est utilisée pour calculer la constante d'équilibre d'une réaction, tandis que la cinétique chimique se concentre sur la vitesse et le mécanisme de cette réaction, permettant ainsi de déterminer le temps nécessaire pour atteindre cet équilibre. C'est pourquoi la thermodynamique fournit des informations sur l'état stable de la combustion, tandis que la cinétique chimique décrit l'état transitoire du système pendant le processus de combustion. En particulier, l'information la plus significative est [33] :

- Le taux auquel les espèces sont générées ou épuisées.
- Le taux auquel la chaleur de la réaction est libérée.

La chimie de la combustion présente deux caractéristiques distinctives par rapport à d'autres systèmes chimiques:

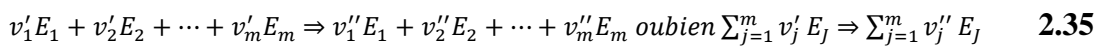
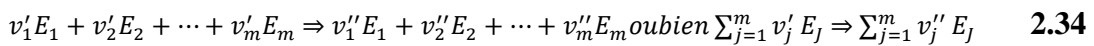
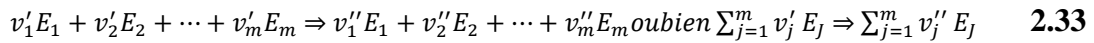
- Les taux de réactions de la combustion sont fortement sensibles à la température.
- Une grande quantité de chaleur est libérée au cours de la réaction chimique.

La libération de chaleur facilite le transfert thermique des produits vers les réactifs, entraînant ainsi une augmentation de leur température, ce qui stimule les réactions chimiques à des taux extrêmement élevés.

Dans le domaine des processus de combustion, la vitesse à laquelle le combustible et l'oxygène sont consommés revêt une importance capitale. Pour garantir un laps de temps suffisant pour que les réactions chimiques aient lieu, les systèmes de combustion impliquent souvent une interaction complexe entre la dynamique des fluides et le transfert de chaleur. L'ensemble des réactions élémentaires décrivant la réaction globale est appelé mécanisme réactionnel ou mécanisme de combustion. Ces mécanismes peuvent comprendre deux étapes ou plus, en fonction de la complexité des réactions impliquées. La complexité d'un mécanisme peut augmenter rapidement en fonction de la complexité de la molécule de combustible. Par exemple, pour la combustion du CH<sub>4</sub>/air, un mécanisme raisonnable inclut 53 espèces et 325 réactions ou étapes (mécanisme réactionnel GriMech 3.0) [34]. En ce qui concerne la simulation de la formation de suie, un mécanisme raisonnable comprend 101 espèces et 1034 réactions ou étapes (mécanisme réactionnel GriMech 2.11 ou mécanisme ABF) [35].

#### 2.5.4.1. Réactions et mécanismes réactionnels :

La réaction chimique sous une forme générale s'écrit :

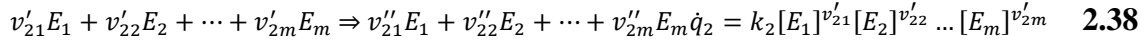
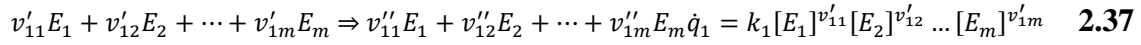


Son taux de réaction ou d'avancement est :

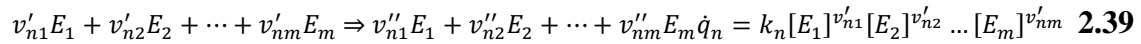
$$\dot{q} = \frac{1}{(v'_1 - v''_1)} \frac{dE_1}{dt} = \frac{1}{(v'_2 - v''_2)} \frac{dE_2}{dt} = \dots = \frac{1}{(v'_m - v''_m)} \frac{dE_m}{dt} = k[E_1]^{v'_1} [E_2]^{v'_2} \dots [E_m]^{v'_m} \quad \mathbf{2.36}$$

$E_j$  Sont les espèces,  $v'_j$  et  $v''_j$  sont les coefficients stœchiométriques des réactifs et des produits, respectivement.

Dans un mécanisme réactionnel composé de n réactions élémentaires impliquant m espèces, on peut écrire :



.....



Par exemple, le taux de production de l'espèce dans l'ensemble du mécanisme est formulé comme suit :

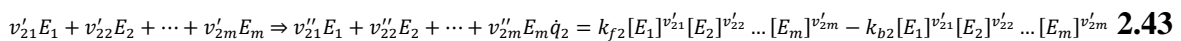
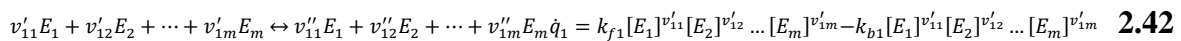
$$\frac{dE_1}{dt} = (v''_{11} - v'_{11})\dot{q}_1 + (v''_{21} - v'_{21})\dot{q}_2 + \dots + (v''_{n1} - v'_{n1})\dot{q}_n = \sum_{i=1}^n \text{pour } j=1 v_{ij} \dot{q}_i \quad \mathbf{2.40}$$

Avec  $v_{ij} = (v''_{ij} - v'_{ij})$ , Les indices i et j sont utilisés pour désigner à la fois les réactions et les espèces. Pour une espèce donnée j, le taux de production peut être exprimé comme suit :

$$\frac{dE_j}{dt} = \sum_{i=1}^n v_{ij} \dot{q}_i = \sum_{i=1}^n v_{ij} \prod_{j=1}^m [E_j]^{v'_{ij}} \quad j = 1, m \quad \mathbf{2.41}$$

### 2.5.4.2. Constante d'équilibre :

Si le mécanisme général comprend n réactions élémentaires réversibles impliquant m espèces chimiques, pour chaque espèce  $E_j$ , deux constantes de taux de réaction sont associées :  $k_{fj}$  pour la réaction directe et  $k_{bj}$  pour la réaction inverse. Le mécanisme et les taux de chaque réaction peuvent être exprimés comme suit :



.....

$$v'_{n1}E_1 + v'_{n2}E_2 + \dots + v'_{nm}E_m \Rightarrow v''_{n1}E_1 + v''_{n2}E_2 + \dots + v''_{nm}E_m \dot{q}_n = k_{fn}[E_1]^{v'_{n1}}[E_2]^{v'_{n2}} \dots [E_m]^{v'_{nm}} - k_{bn}[E_1]^{v'_{n1}}[E_2]^{v'_{n2}} \dots [E_m]^{v'_{nm}} \quad \mathbf{2.44}$$

Le taux de réaction pour l'espèce  $E_j$  s'écrit :

$$\frac{d[E_j]}{dt} = \sum_{i=1}^n v_{ij} k_{fi} [E_1]^{v'_{1j}} [E_2]^{v'_{2j}} \dots [E_m]^{v'_{mj}} - v_{ij} k_{bi} [E_1]^{v'_{1j}} [E_2]^{v'_{2j}} \dots [E_m]^{v'_{mj}} \quad \mathbf{2.45}$$

Qui peut s'écrire aussi :

$$\frac{d[E_j]}{dt} = \sum_{i=1}^n v_{ij} \left( k_{fi} \prod_{j=1}^m [E_j]^{v'_{ij}} - k_{bi} \prod_{j=1}^m [E_j]^{v''_{ij}} \right) \quad j = 1, m \quad \mathbf{2.46}$$

A l'équilibre thermodynamique on à  $\frac{d[E]}{dt} = 0$  cela donne :

$$\frac{K_f}{K_b} = \frac{\prod_{j=1}^m [E_j]^{v''_{ij}}}{\prod_{j=1}^m [E_j]^{v'_{ij}}} = \prod_{j=1}^m [E_j]^{(v''_{ij} - v'_{ij})} = K_c \quad \mathbf{2.47}$$

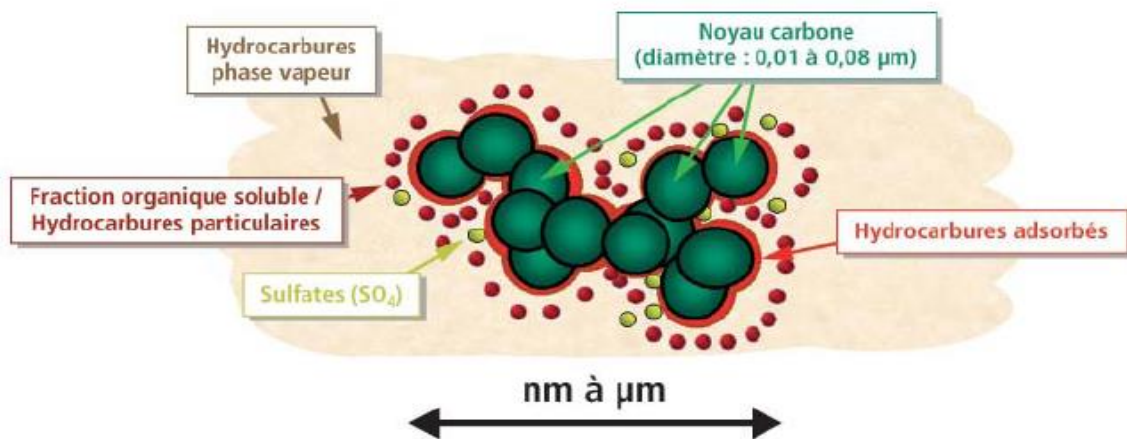
$K_c$  Représente la constante d'équilibre basée sur les concentrations.

Il est également possible de calculer la constante d'équilibre en se basant sur les fractions massiques et molaire.

## 3 : Modélisation de la formation de suies

### 3.1 Introduction :

La suie se forme pendant la combustion d'hydrocarbures ou lors de la pyrolyse à haute température. Il est principalement composé de carbone, mais il contient également des quantités limitées d'autres éléments comme l'hydrogène et l'oxygène. La fraction organique soluble de la suie comprend souvent des hydrocarbures non brûlés [36], ainsi que des dérivés oxygénés tels que les cétones, les esters, les aldéhydes, les lactones, les éthers et les acides organiques, ainsi que des composés aromatiques polycycliques (PAHs) et leurs dérivés nitrés et oxygénés. Il peut également y avoir des éléments métalliques, des dérivés minéraux comme le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ) et des sulfates.



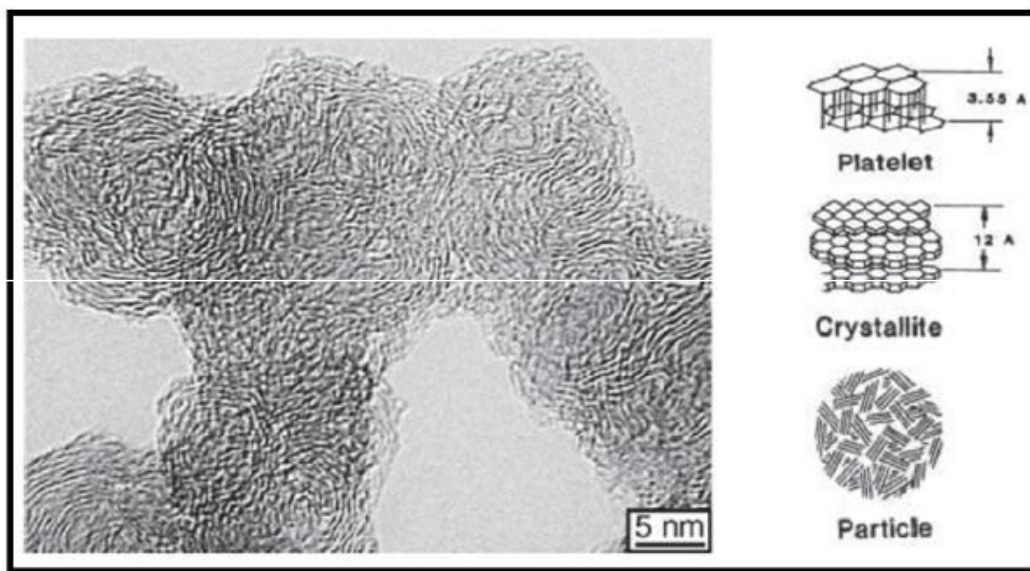
**Fig.3.1** : Structure fondamentale d'une particule de suie automobile [37].

La structure d'une particule de suie est répertoriée dans le tableau ci-dessous [Barbusse et Plassat, 2005] [38].

Elément	C	H	O	N	S
Suie vierge	83,5	1,04	10,5	0,24	1,13
Suie dégazée	83,8	0,85	10,7	0,22	0,1

**Tableau 3.1** : Structure des particules de suie Diesel (pourcentages massiques)

Les suies sont constituées de chaînes linéaires ou ramifiées qui sont formées par l'assemblage d'entités élémentaires appelées monomères, particules primaires ou sphérules [39]. Bien qu'elle présente de nombreuses imperfections, la structure microscopique des suies est similaire à celle du charbon. Les plaquettes, qui ont une distance de 0,355 nm entre les plans, se superposent pour former des monomères. Les plaquettes se rassemblent les unes sur les autres, formant une structure connue sous le nom de turbostratique ou de pelure d'oignon. Au-delà d'une certaine taille, ces structures deviennent instables, ce qui limite leur croissance. Un modèle de structure interne où les plaquettes se groupent en groupes de 2 à 5 pour former des cristallites est représenté à la Figure 3.2 [40]. Environ un millier de ces cristallites sont renfermés dans une sphérule.



**Fig.3.2** : Structure interne d'une particule de suie diesel, d'après [38].

### **3.2. Formation de précurseurs de suie (la phase gaze) :**

La première étape de la formation des composés lourds (HAP) est la formation du radical vinyle et du benzène. Par conséquent, de nombreuses études se sont concentrées sur la formation du premier cycle aromatique, un certain nombre de méthodes de réaction ont été proposées pour la croissance des hydrocarbures aromatiques polycycliques dans une flamme

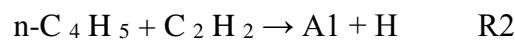
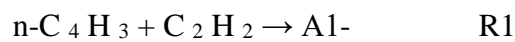
d'hydrocarbures, et il a été découvert que l'importance relative de chaque voie individuelle dépend considérablement de la structure moléculaire du carburant [39].

La formation du benzène ou radical phényle dépend de trois voies principales :

### 3.2.1. La première voie C<sub>4</sub>+C<sub>2</sub> :

Ce chemin est basé sur les réactions suivantes (démontrée par Cole et al.[40] et Frenklach et

Warnatz [41]):

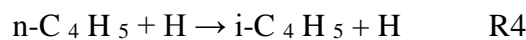


Où : C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> représente l'acétylène, n-C<sub>4</sub>H<sub>3</sub> (radical but-1-en-3-yn-1-yle) a la structure

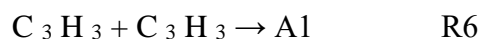
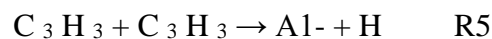
HC≡C-CH=·CH, n-C<sub>4</sub>H<sub>5</sub> (radical but-1,3-dien-1-yle) a la structure H<sub>2</sub>C=CH-CH=·CH,

A1- et A1 représentent le radical phényle et le benzène respectivement.

Plusieurs chercheurs ont mené une analyse critique de la voie de formation du benzène à partir de C<sub>4</sub> + C<sub>2</sub> [40] [41]. Ils proposent que les radicaux n-C<sub>4</sub>H<sub>3</sub> et n-C<sub>4</sub>H<sub>5</sub> se décomposent trop rapidement en leurs isomères respectifs i-C<sub>4</sub>H<sub>3</sub> et i-C<sub>4</sub>H<sub>5</sub> selon les réactions suivantes :

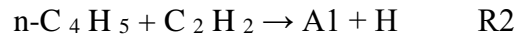
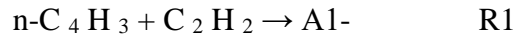


### 3.2.2. La deuxième voie C<sub>3</sub>+C<sub>3</sub> : la recombinaison du radical propargyle (C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>) :



Cette voie a été adoptée par (Marinov et al [42]) qui ont modélisé indépendamment les taux de formation de benzène dans une flamme C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>. Indiquent également le fulvène (5-méthylencyclopenta-1,3-diene) comme produit direct de la réaction C<sub>3</sub> + C<sub>3</sub> (réaction d'addition des radicaux propargyles (C<sub>3</sub>H<sub>3</sub>) et allyles (C<sub>3</sub>H<sub>5</sub>)), le fulvène formant le benzène

par réarrangement. Ce chemin est basé sur les réactions suivantes (démontrée par Cole et al.[40] et Frenklach et Warnatz [41]):

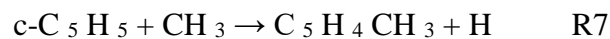


où :  $\text{C}_2\text{H}_2$  représente l'acétylène,  $n\text{-C}_4\text{H}_3$  (radical but-1-en-3-yn-1-yle) a la structure

$\text{HC} \equiv \text{C}-\text{CH} = \cdot\text{CH}$ ,  $n\text{-C}_4\text{H}_5$  (radical but-1,3-dien-1-yle) a la structure  $\text{H}_2\text{C} = \text{CH}-\text{CH} = \cdot\text{CH}$ ,

A1- et A1 représentent le radical phényle et le benzène respectivement.

**3.2.3. La troisième voie  $\text{C}_5+\text{C}_1$**  : Elle est proposée par Marinov et al. (1997) [43]. Cela dépend des réactions suivantes :



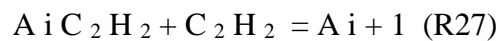
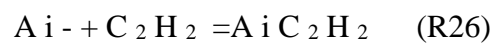
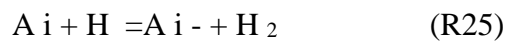
Toutefois, Lamprecht et ses collaborateurs (2000) [44] ont inclus la réaction de formation potentielle du benzène dans leur modèle cinétique lors de leur étude sur des flammes riches en acétylène et en propène (anciennement appelé « propylène », est un alcène de formule semi-développée  $\text{CH}_2=\text{CH}-\text{CH}_3$ ). Ils ont déterminé que cette voie réactionnelle était très peu significative par rapport aux voies impliquant des combinaisons de  $\text{C}_4 + \text{C}_2$  et  $\text{C}_3 + \text{C}_3$ . En conséquence, il est justifié de considérer que l'impact de cette voie sur le processus de formation du premier cycle aromatique est minime.

### 3.3. Le mécanisme HACA :

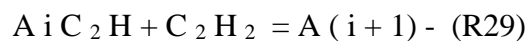
Le mécanisme de formation d'hydrogène des HAP le plus connu est le HACA (Hydrogène Extraction - Acétylène Addition) adopté par Frenklach et al. (1990) [45]. Les aromatiques sont formés par déshydrogénation thermique, ce qui conduit à la formation alcanes, alcènes et d'alcènes, jusqu'à la formation des premiers composés aromatiques. Ensuite, des molécules

aromatiques de plus en plus grosses se forment. Le mécanisme de l'HACA peut ainsi être étendu pour décrire la croissance des hydrocarbures aromatiques polycycliques.

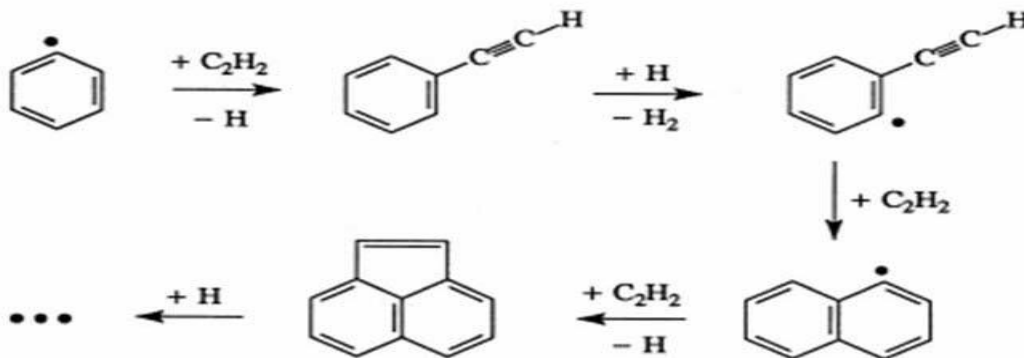
Ce mécanisme HACA représente une séquence de réaction répétitive de réaction 01 (R1) activation radicalaire par abstraction de l'atome H des molécules stables et le réaction 02 (R2) addition de la molécule  $C_2H_2$  au site radicalaire. En prenant la croissance du benzène (A1) en naphthalène (A2) comme exemple, le mécanisme HACA est réalisé comme suit :



ou



Avec :  $i=1,2,3,\dots$



**Figure.3.3** : Modèle de séquence HACA [Frenklach et Wang, 1994][46].

### 3.4. La développement et l'oxydation des particules de suies :

Malgré les progrès de la recherche, la formation des suies demeure un phénomène extrêmement complexe, marqué par des incertitudes persistantes. La formation de la suie résulte de la conversion de molécules hydrocarbonées du carburant, qui ne contiennent initialement que quelques atomes de carbone, en agrégats contenant plusieurs milliers d'atomes

de carbone. Cependant, des études expérimentales approfondies dans des flammes stabilisées, des tubes à choc et des réacteurs à écoulement ont permis d'identifier les étapes essentielles de ce processus.

La transition des PAH de la phase gaz-solide en particules primaires entraîne la formation de suie. La croissance du benzène et du radical phényle, deux composés mono aromatiques, est responsable de la production de ces PAHs. Dans la phase solide, plusieurs étapes se distinguent. La coagulation augmente le diamètre des particules primaires et réduit leur nombre. La condensation des composés de la phase gazeuse augmente le diamètre des particules solides tout en maintenant leur nombre. La figure 3.4 présente schématiquement les voies réactionnelles qui mènent à la production de suie [Bockhorn, 1994]. [47].

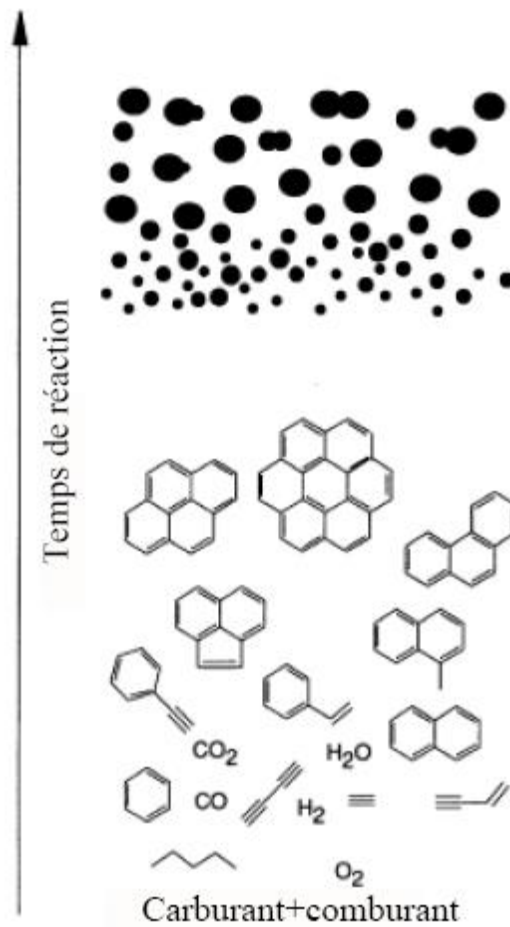
Pendant la phase d'oxydation, le combustible hydrocarboné est dégradé et produit des radicaux hydrocarbonés plus petits qui se regroupent ensuite pour former des cycles aromatiques. La formation des hydrocarbures aromatiques polycycliques (PAHs) se produit par l'addition d'acétylène et la cyclisation. Les sphérules primaires prennent forme lors de la coagulation des PAHs. Ces sphérules primaires coagulent rapidement tout en adsorbant simultanément des molécules de la phase gazeuse à leur surface. La coagulation rapide de ces sphérules primaires entraîne l'adsorption simultanée de molécules de la phase gazeuse à leur surface. Alors que la formation initiale des sphérules et la coagulation ont un impact direct sur le nombre total de sphérules. La coagulation permet également de déterminer la taille finale des particules de suie et leur structure agrégée irrégulière (Bockhorn, 1994) [47]. Malgré l'incertitude quant aux étapes de formation des HAPs et de la suie, il y a un consensus général sur la vision globale des étapes impliquées (Richter et Howard, 2000) [48]:

Formation de précurseurs de suie pendant la phase gazeuse, ce qui permet:

1. La formation des premières particules à partir des PAHs ou leur nucléation. Qui peut être suivi des étapes suivantes :

2. Condensation par addition de PAHs,
3. Coagulation via des collisions inter-particules,
4. Croissance de surface, et enfin,
5. Oxydation des particules de suie.

Ces étapes correspondent au processus de formation des suies et seront étudiées en détail dans les prochaines sections.



**Fig.3.4** : Les étapes nécessaires à la formation de la suie [Bockhorn, 1994][47].

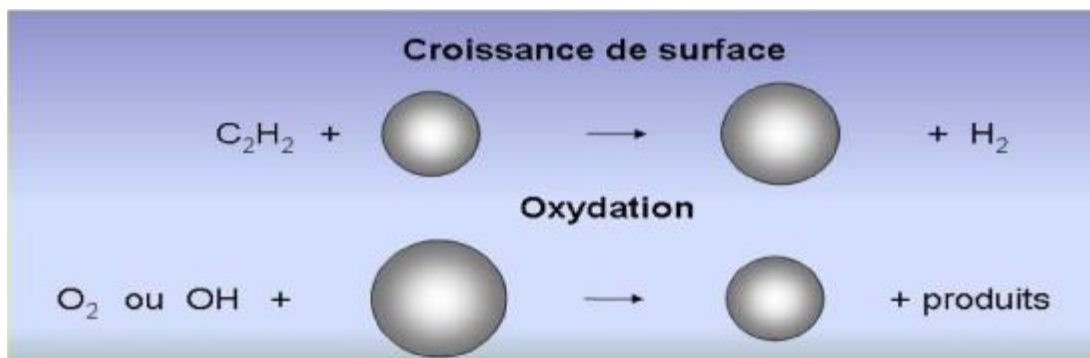
### 3.4.1. Nucléation : La naissance de première particule de suie

Les molécules HAP se regroupent et finissent par devenir des particules solides sphériques d'une taille d'environ un nanomètre. Les nucléés continuent de grossir en adsorption des molécules de HAP en phase gazeuse une fois qu'ils ont été formés. Le carbone sous forme de

nucléé progresse lentement d'un état amorphe désorganisé à une structure en couches organisées, similaire au graphite. La nucléation est la première étape de la formation des nucléés mûrs.

### 3.4.2. Condensation et Croissance de surface :

Malgré la présence de nombreuses particules lors de la phase de nucléation, elles ne représentent qu'une fraction infime de la masse totale de suie produite. Il est donc essentiel d'effectuer des procédures supplémentaires afin de transformer les hydrocarbures gazeux en suie, alors que certaines molécules réagissent à la surface des suies. On retrouve encore ici l'acétylène, les HAP et le benzène. La croissance de surface est un processus hétérogène qui produit la majorité de la masse totale de suie [49], à cette étape, les nucléés se développent et se transforment en particules primaires avec une forme similaire à celle d'une sphère (figure 4). [50].



**Fig.3.5** : Phénomène de croissance de surface [50].

### 3.4.3. Coagulation et agglomération

Les collisions des particules soumises au mouvement brownien sont responsables de ces deux phénomènes. Lorsque les particules sont "jeunes" et leur surface croît rapidement, elles peuvent fusionner car les particules formées sont mal structurées et leur structure interne est mobile, c'est le processus de coagulation.

Lorsqu'elles sont "âgées", les particules se regrouperont sans fusionner, car il y a un volume à réorganiser et la structure interne est plus rigide, c'est le processus d'agglomération (agrégation).

Le passage entre ces deux processus se produit lorsque les particules primaires ont une taille d'environ 10 nm. À la différence de la nucléation et de la croissance de surface, ces phénomènes physiques se déroulent intra particulièrement et ne provoquent pas d'augmentation de masse. [51].

#### **3.4.4. Oxydation des particules suies :**

L'oxydation consiste à convertir les atomes de carbone ou les hydrocarbures en produits de combustion. Même dans une zone riche en combustible de flamme, lorsque le carbone est partiellement oxydé en dioxyde de carbone (CO), il cesse de réagir pour former des particules de suie [52]. Les étapes de formation de suie mentionnées précédemment, telles que décrites ci-dessus, peuvent se produire à la fois dans des conditions spatiales et temporelles distinctes, comme dans une flamme de diffusion laminée, ou simultanément, comme dans un réacteur à agitation complète. Le processus peut varier considérablement d'un extrême à l'autre dans les systèmes de combustion réels [52].

De la pyrolyse à l'agrégation, l'oxydation peut se produire à tout moment du processus de formation des suies. L'état du mélange au moment considéré détermine les espèces oxydantes les plus actives.

Dans les conditions stœchiométriques ou riches en combustible, l'espèce OH domine l'oxydation des suies, tandis que dans les conditions pauvres en combustible, l'espèce OH et l'espèce O<sub>2</sub> oxydent les suies plus souvent [53]. Il est également important de noter la complexité de l'impact de l'ajout d'oxygène sur la production de suie. La proportion peut varier en fonction du type de combustible utilisé et du mélange air-carburant préalablement effectué.

Bien que ce ne soit pas toujours le cas, un excès d'oxygène a tendance à réduire la formation de suie. De plus, l'oxygène, qui est intrinsèquement lié à la température, a un effet exponentiel sur la formation et l'oxydation des suies. Ainsi, lorsqu'on modifie la stœchiométrie, il peut être difficile de distinguer les variations d'oxygène et les variations de température. [53].

### **3.5. Dérivés des HAP : impacts sur l'environnement et la santé**

Les produits résultant des réactions des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) exposés aux oxydants atmosphériques sont présents à des concentrations significatives, parfois comparables à celles de leurs précurseurs, dans l'atmosphère. Ces composés peuvent en effet être engendrés par des processus de chimie hétérogène à l'interface entre le gaz et les surfaces des particules, mais également en phase gazeuse. De plus, certaines de ces molécules peuvent être directement émises dans l'atmosphère lors de divers processus de combustion, tels que le transport et le chauffage [54].

### **3.6. Modélisation de la formation de suie**

La modélisation de la formation de suie dans les systèmes de combustion est un problème très difficile. Plusieurs modèles mathématiques détaillés ont également été créés pour faciliter la compréhension et la validation des lois physico-chimiques introduites. Dans cette section, nous nous concentrerons sur les technologies numériques utilisées [55]. :

- La méthode de moments.
- La méthode de monte carlo.
- La méthode de sectionnement.

Ces modèles sont basés sur l'équation de Smoluchowski [56] qui décrit la cinétique de formation et de collision entre les particules, elle est définie par :

$$\frac{dN_1}{dt} = - \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{1,j} N_1 N_j \quad 3.1$$

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{i,j-1} N_j N_{j,i-j} - \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{i,j} N_i N_j \quad 3.2$$

Avec :

$i = 1, 2, \dots \dots \infty$

$t$  : le temps

$\beta$  [ $m^3 \cdot s^{-1}$ ]: le facteur d'efficacité de collision entre deux particule de volume  $v_i$  et  $v_j$

$v_i$  et  $v_j$  : le volume de particule  $i$  ( ou de particule  $j$ )

$N_i$  : est le nombre de particule de volume  $v_i$  par unité de volume de gaz.

Le régime d'écoulement, qui peut être visqueux (continu), moléculaire ou transitoire, détermine le coefficient d'efficacité de collision [ $m^3 \cdot s^{-1}$ ]. La valeur du nombre de Knudsen [-], qui est la relation entre le parcours libre moyen des molécules de gaz ( $\lambda$ ) et le diamètre de la particule ( $d$ ), détermine le régime auquel appartient le système [56] :

$$kn = \frac{2\lambda_{gaz}}{d} \quad 3.4$$

Le parcours moyen libre des molécules gazeuses, noté  $\lambda$  [m], est déterminé en fonction du diamètre des molécules constituant le gaz. Dans le cas de l'air, on utilise le diamètre de la molécule d'azote, noté  $d_{gaz} = 36$  nm.

$$\lambda_{gaz} = \frac{RT}{\sqrt{2}\pi d_{gaz}^2 N_A P} \quad 3.5$$

Le nombre de Knudsen est proportionnel directement à  $T/Pd$ . En conséquence, pour un diamètre spécifique de particule et une variation limitée de la température, la pression est le paramètre déterminant pour le régime d'écoulement.

- Le régime continu : pour  $kn \ll 1$ , et le facteur de collision est définie par :

$$\beta_{ij}^c = k_c \left( \frac{c_i}{m_i^{1/3}} + \frac{c_j}{m_j^{1/3}} \right) \left( m_i^{1/3} + m_j^{1/3} \right) \quad 3.6$$

Avec :  $k_c = \frac{2k_B T}{3\eta}$  et C le facteur de correction du glissement de Cunningham. Cette dernière peut s'exprimer sous la forme  $C = 1 + 1.257Kn$ .

- Le régime moléculaire : pour  $kn \gg 1$ , et le facteur de collision est définie par :

$$\beta_{ij}^f = k_f \sqrt{\frac{1}{m_i} + \frac{1}{m_j}} \left( m_i^{1/3} + m_j^{1/3} \right)^2 \quad 3.7$$

Avec :  $k_f = \varepsilon \sqrt{6k_B T / \rho} (3/4 \pi \rho)^{1/6}$  et le multiplicateur  $\varepsilon$  est le facteur d'amélioration de Vander Waals.

Cet ensemble d'équations différentielles représente l'évolution temporelle d'une communauté de particules à travers le temps.

Tous les  $N_i$  constituent une distribution discrète de la taille des particules et la solution de l'Eq. (3.1) qui définit l'évolution temporelle de cette distribution.

Mathématiquement, la méthode de moments est la méthode la plus courante utilisé pour décrire la distribution des particules [55].

La somme d'une quantité  $x_i$  pondérée par une fonction de probabilité  $p_i$  est appelée moment d'ordre  $M_r$ . On peut calculer le moment d'ordre  $r$  en décomposant les particules de suie en fonction de leur distribution massique :

$$M_r = \sum_1^\infty x_i^r P_i \quad 3.8$$

Dans le cas de la formation de suie  $M_r$  est défini par [55]. :

$$M_r = \sum_1^\infty m_i^r N_i \quad 3.9$$

$M_1$  il s'agit de la concentration totale des particules ainsi que du second moment :  $M_1 = F_V \frac{\rho_s}{m_1}$

Avec :  $m_i = i m_1$

$M_1$  : étant la masse de la plus petite particule de suie

$N_i$  : Concentration des particules  $i$ .

$F_v$  : est la fraction volumique de suie.

Dans la plupart des cas, les propriétés significatives de la suie peuvent être adéquatement représentées par un nombre limité de moments (par exemple, les trois ou six premiers moments).

La méthode des moments peut fournir bon nombre des propriétés attendues de la suie et, en même temps, maintenir le coût de calcul à un niveau relativement bas.

A partir de la première équation différentielle, on peut écrire [56]:

$$\frac{dM_0}{dt} = -\frac{1}{2} \sum_i^\infty \sum_j^\infty \beta_{i,j} N_i N_j \quad 3.10$$

$$\frac{dM_1}{dt} = 0 \quad 3.11$$

$$\frac{dM_2}{dt} = \sum_i^\infty \sum_j^\infty ij \beta_{i,j} N_i N_j \quad 3.12$$

$$\frac{dM_3}{dt} = 3 \sum_i^\infty \sum_j^\infty ij^2 \beta_{i,j} N_i N_j \dots \dots \dots \quad 3.14$$

En utilisant les notations  $R$ ,  $G$  et  $W$  pour représenter la nucléation, la coagulation et la croissance de surface respectivement :

$$\frac{dM_0}{dt} = R_0 - G_0 \quad 3.15$$

$$\frac{dM_1}{dt} = R_1 + W_1 \quad 3.16$$

$$\frac{dM_2}{dt} = R_2 + G_2 + W_2 \dots \dots \dots \quad 3.17$$

$$\frac{dM_r}{dt} = R_r + G_r + W_r \quad 3.18$$

Ce système d'équations différentielles peut être résolu en l'ajoutant à un système d'équations décrivant la cinétique des précurseurs chimiques spécifiant ainsi la vitesse de nucléation des particules.

La connaissance de tous les moments permet une description exhaustive du système. Cependant, en pratique, l'attention se porte principalement sur les deux premiers moments. Ainsi, la méthode des moments permet de remplacer un ensemble infini d'équations différentielles par un nombre limité d'équations qui offrent une description satisfaisante du système. La principale difficulté réside dans le fait que ce modèle mathématique est à la fois très complexe et exigeant en précision.

## 4. Résultat et discussion

### 4.1. Description du problème, conditions aux limites et validation

Plusieurs études ont utilisé la configuration à jets opposés avec divers carburants et oxydants. L'étude menée par Mengxiang Zhou et ses collègues [57] se concentre sur une installation expérimentale comprenant deux buses opposées avec un diamètre intérieur de 10 mm, séparées par une distance de 8 mm.

Le côté inférieur éjecte l'éthylène à une vitesse de 21,6 cm /s, tandis que le côté supérieur éjecte l'oxydant à une vitesse de 22,1 cm /s. La température et la pression initiales du comburant et du carburant sont identiques, avec respectivement 300K et 1 atm.

Le mécanisme ABF est utilisé pour réaliser les calculs. Il s'agit d'un mécanisme de réaction, qui représente une série de réactions basiques développées dans le but de décrire ou de représenter le processus de combustion. Il donne une explication approfondie de ce qui se passe à chaque étape d'une transformation chimique spécifique. En outre, un processus réactionnel complet offre des données sur la quantité de chaque réactif utilisé et de chaque produit obtenu. La conception du mécanisme réactionnel ABF [58] a été réalisée afin de simuler la combustion du gaz naturel. Il est inspiré de Grimeh 2.11 [59] et comprend des sous-mécanismes pour les espèces en C3, C4, C5, C6, ainsi que pour les HAP jusqu'à A4.

#### 1. Conditions aux limites et stratégie de calcul :

Les conditions limites pour le combustible et le comburant sont :

- Température d'injection du carburant  $T_{inj}=300$  K.
- La composition du carburant à l'injection est :

	F 01	F 02	F 03	F 04
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	0,4	0,4	0,4	0,4
H <sub>2</sub>	0,15	0,2	0,25	0,3
CO	0,45	0,4	0,35	0,3

**Tableau 4.1** composition du mélange

- Température d'injection du comburant  $T_{inj}=300$  K.
- Le comburant est l'air atmosphérique :

O <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>
0.21	0.79

- Les vitesses d'injection sont égales pour le carburant et le comburant, la vitesse de déformation est calculée en fonction des vitesses d'injection, la distance entre les injecteurs et les densités des réactifs par [59] :

$$a = \frac{2(-u_O)}{L} \left[ 1 + \frac{u_F}{(-u_O)} \sqrt{\frac{\rho_F}{\rho_O}} \right] \quad (1)$$

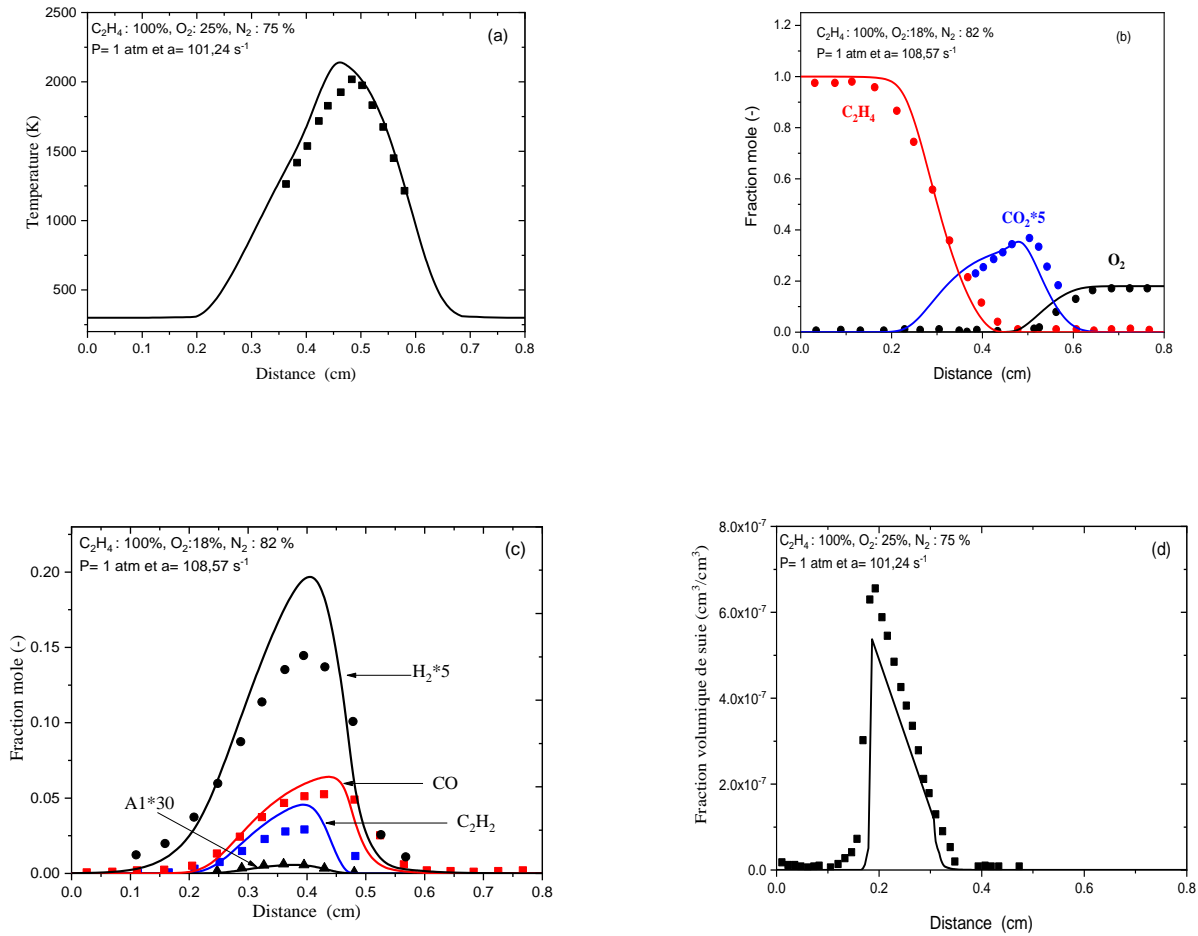
Le logiciel Chemkin Oppdif est utilisé pour résoudre des équations aux dérivées partielles avec leurs conditions aux limites appropriées. La cinétique de combustion est décrite par le mécanisme composé ABF, qui gère 101 espèces dans 534 réactions élémentaires. Ce dernier a été utilisé pour des pressions allant jusqu'à 10 bar.

Les réactions élémentaires les plus significatives utilisées dans les interprétations sont :





Les profils de température de la flamme et les fractions molaires le long de la distance axiale sont illustrés dans la figure 4.1. La consommation des espèces telles que  $\text{C}_2\text{H}_2$  et  $\text{O}_2$ , ainsi que la production des espèces mineures et majeures ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ ) et la fraction volumique de suie sont correctement prédictibles en comparaison avec les mesures expérimentales.



**Figure.4.1** Température et profils des espèces (résultats expérimentaux (symboles) et prédiction (lignes)).

La figure 4.1.a présente la température le long de l'axe central de la flamme. La concordance entre les résultats expérimentaux et les résultats du modèle est évidente. Ils montrent tous les deux que le front de flammes représenté par la valeur maximale de la température est situé du côté oxydant du niveau de stagnation, ce qui correspond exactement à ce que l'on pourrait s'attendre pour eux.

Les fractions molaires du carburant (éthylène), de l'oxygène et des principaux produits de combustion sont présentées dans les figures 4.1.b et c. Il est observé que les niveaux de carburant et d'oxygène ont baissé de leurs buses respectives l'un vers l'autre et ont baissé jusqu'à zéro à la même position qui correspond à la température maximale de la flamme.

Cela indique que les réactions entre le combustible et le comburant sont complètes et qu'aucun d'entre eux ne se déverserait à travers le front de flamme, ce qui est prévu pour les flammes actuelles avec des taux de déformation modérés et un temps de séjour d'écoulement adéquat.

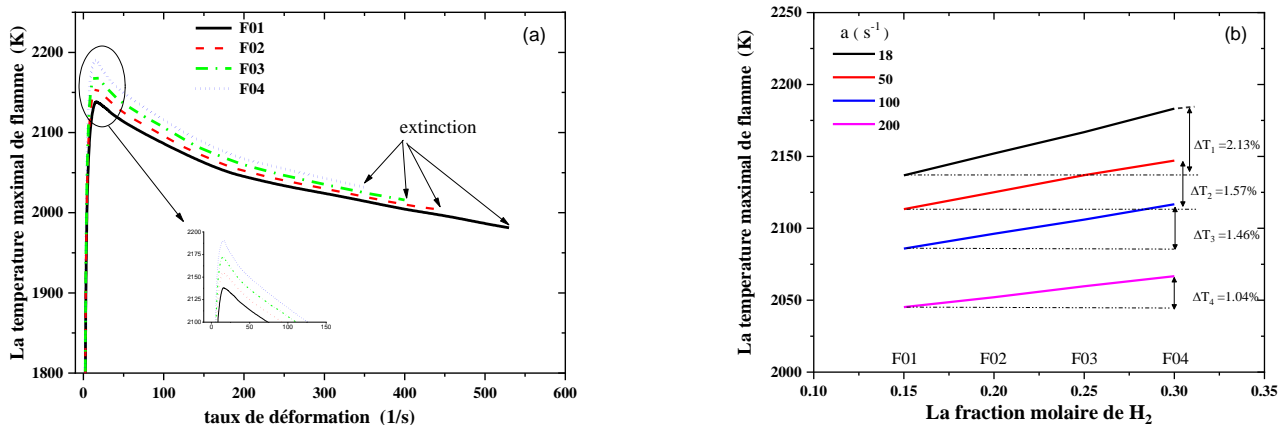
Comme le montre la figure 4.1.b et c, les pics de  $\text{CO}_2$  atteignent le même point que le front de flamme, tandis que l'emplacement des pics de  $\text{CO}$  et de  $\text{H}_2$  est légèrement déplacé vers le côté riche en carburant. Il est important de noter que les fractions molaires expérimentales et prédites des principaux produits de combustion sont en accord satisfaisant.

Comme le montre la figure. 4.1.d, le profil modélisé de la fraction volumique de suie le long de la ligne centrale des flammes d'éthylène pur correspond à la fois qualitativement et quantitativement à ce qui a été mesuré. Il convient de noter que le modèle de suie a déjà été utilisé et validé dans un certain nombre d'études à contre-courant et que ses performances satisfaisantes dans la prévision de la flamme de suie d'éthylène sont tout à fait conformes aux attentes.

#### **4.2. L'effet de $\text{H}_2$ et du taux de déformation sur la température de la combustion**

Suivant les différentes compositions du mélange (tableau 4.1), la variation de la température, de la combustion à  $P=1$  atm en fonction du taux de déformation, est illustrée sur la fig. 4.2 (a). On y remarque sa croissance monotone qui va atteindre son maximum à un taux de déformation égale à  $20 \text{ s}^{-1}$ , puis au-delà de cette valeur de taux de déformation, elle décroît jusqu'à son extinction. Le point d'extinction diffère d'un mélange à un autre en fonction de concentration de  $\text{H}_2$  dans le mélange. Qui augmente la résistance de la flamme [60]. La concentration de l'hydrogène, variant en volume de 15% à 30 % dans le mélange, influe significativement sur l'élévation du pic de température. Son maximum,  $T_{\text{max}}$ , augmente lorsque  $X_{\text{H}_2}$  augmente dans le syngas (2123 K pour F01 et 2160 K pour F04) ; cela est principalement dû à la diffusivité et à la réactivité de l'hydrogène qui sont élevées voir Fig. 4.2 (b). Sans aucun doute, la décomposition de l'hydrogène fournit un réservoir de radicaux

chimiques tels que H et OH suivant les réactions élémentaires suivantes R02, R03, R05, R06 et R07, Le taux d'augmentation de la température suivant la quantité d'hydrogène dans le comburant d'un mélange F01 à un mélange F04 passe d'une valeur de 1.04 % suivant un taux de déformation égale à  $200 \text{ s}^{-1}$  à une valeur de 2.13% à un taux de  $20 \text{ s}^{-1}$ .

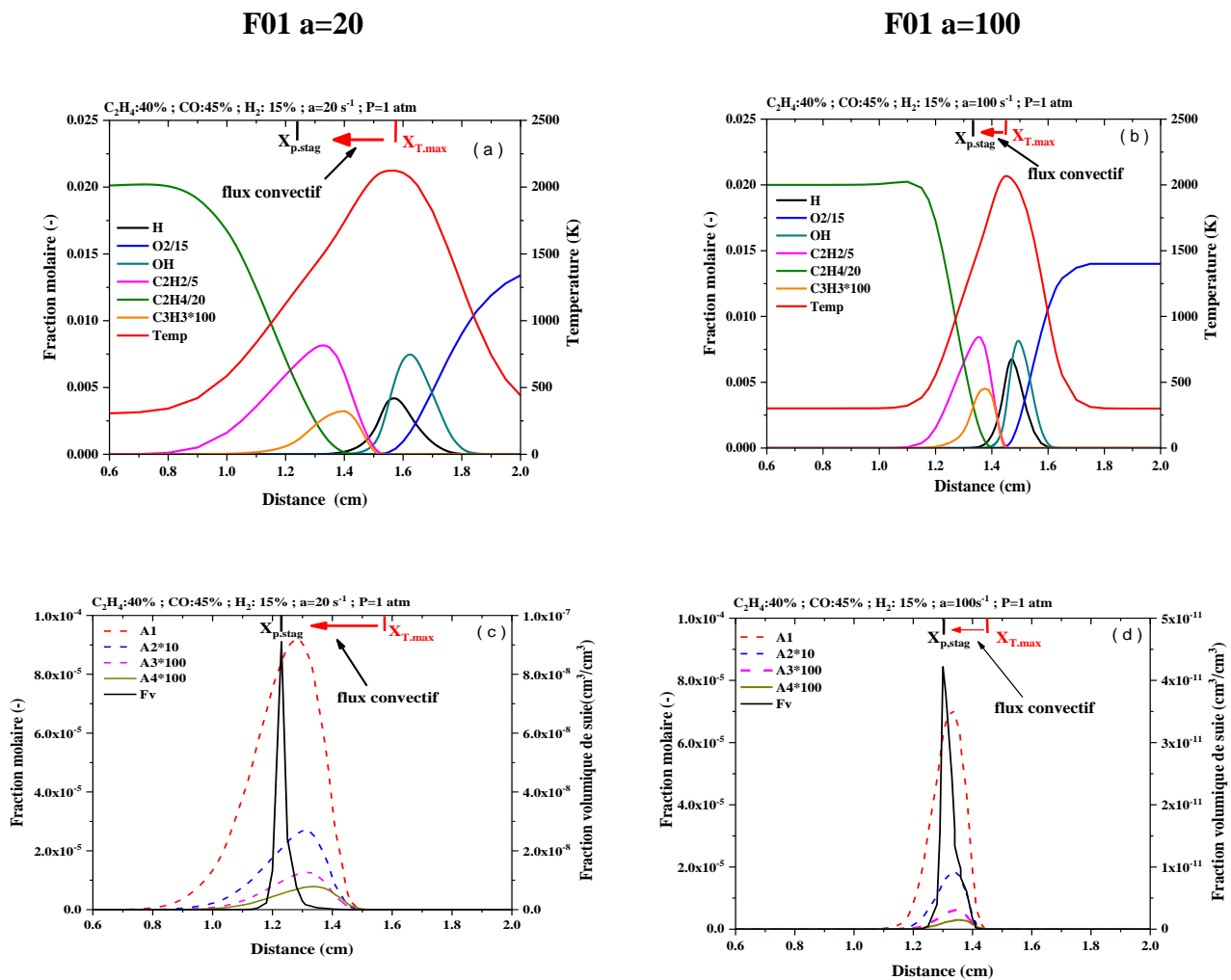


**Figure 4. 2 :** variation de température de combustion en fonction de  $a$  et de  $H_2$

#### 4.3. Les effets de la composition du combustible sur la structure de flamme et la formation de suie à différents taux de déformation :

La formation de suie dans les cas extrêmes des mélanges (F01 et F04) indique la variation de la quantité d'hydrogène dans le combustible. Pour analyser l'effet du taux de déformation de cette formation, la représentation des profils axiaux de la température et les espèces majeurs des flammes est nécessaire. Avec une teneur d'hydrogène de 15 % en volume (F01), la position de la valeur maximale de la température de la flamme, représentant le front de flamme (mentionné par  $X_{T_{max}}$ ), est localisé à une distance  $X_{T_{max}}=1.57 \text{ cm}$  pour une valeur de  $a=20 \text{ s}^{-1}$ , Fig 4.3 (a), un déplacement axial du front de flamme vers le plan de stagnation  $X_{p.stag}$  (coté combustible) est remarqué à une valeur de  $X_{T_{max}}=1.45 \text{ cm}$  pour un taux de déformation de  $100 \text{ s}^{-1}$  Fig 4.3 (b). Lorsque la quantité  $H_2$  augmente dans le combustible (flamme F04) et avec  $a= 20 \text{ s}^{-1}$ , on se

trouve dans la position de  $X_{T_{max}} = 1.55$  cm Fig 4. 4 (a), alors que le déplacement vers le plan de stagnation ( $X_{p.stag}$ ) prend la valeur de  $X_{T_{max}} = 1.41$  cm Fig 4. 4 (b) pour  $a=100$  s<sup>-1</sup>.



**Figure 4. 3** : les effets de la composition du combustible sur la structure de flamme à différents  $a$ (s<sup>-1</sup>)

Le phénomène de la pyrolyse est amorcé à côté du combustible qui n'est pas loin du front de flamme, pour produire de des espèces gazeuses telles que  $C_2H_2$  et  $C_3H_3$ . Ces dernières favorisent la formation du benzène et les HAP précurseurs de suie.

La décomposition de  $C_2H_4$  est affectée par l'augmentation du taux de déformation ; il retarde sa dissociation pour  $a=20$  s<sup>-1</sup>. Ce phénomène commence à partir de la position axiale  $X=0.8$  cm où la consommation de l'espèce  $C_2H_4$  n'est pas rapide, Fig. 4.3 (a), comparativement à la même flamme (F01) avec un taux de déformation  $a=100$  s<sup>-1</sup>. La position de dissociations

localise à  $X=1.1$  cm et la consommation de l'espèce est très rapide Fig. 4.3 (b). De la même manière pour la flamme (F04), l'effet dynamique du taux de déformation affecte la formation des espèces  $C_2H_2$  qui commence à partir de  $X= 0.8$  cm pour un faible taux de déformation ( $a=20$  s<sup>-1</sup>) pour atteindre son maximum, puis se consomme totalement en  $X=1.5$  cm. La production de l'acétylène est temporisée par l'augmentation du taux de déformation pour une valeur d' $a= 100$  s<sup>-1</sup>, la formation de  $C_2H_2$  est rapide relativement au  $a= 20$  s<sup>-1</sup>, elle commence à partir de  $X=1.05$  cm et se consomme rapidement et totalement à  $X= 1.4$  cm. Le radical  $C_3H_3$  (propargyle) est très induit par la variation du taux de déformation dans les deux mélanges F1 et F4. Quant à la diminution de  $C_3H_3$  Figure 4. 4 (a et b), elle est principalement due à la consommation de  $CH_3$  par R40, puisque  $CH_2$  est responsable de la production de  $C_3H_3$  par R193. D'autre part, l'élévation du taux de déformation réduit l'épaisseur de la formation de l'espèce, ainsi que la consommation rapide de cette dernière, alors que l'augmentation de la quantité d'hydrogène ne représente pas comme une source essentielle pour la formation du radical propargyle  $C_3H_3$  soupçonné d'être à l'origine de la formation des premiers noyaux aromatiques et des suies.

Le plan de stagnation est une surface dont la vitesse axiale des deux jets est nulle, il est représenté par  $X_p.St$ , sa position est plus proche côté du combustible que du côté de l'oxydant où la nucléation de la suie commence de se produire par des particules de suie (benzène (A1) , le naphthalène (A2), le phénanthrène (A3) et le pyrène (A4)) transportées par un flux thermique produit par la température maximale de la flamme au niveau du plan de stagnation. Au cours de cette période, le processus physico-chimique joue un rôle important dans la croissance des particules naissantes pour atteindre une valeur maximal près du plan de stagnation, la faible diffusivité des particules dans ce stade entraine l'élimination de ces dernières .Le même scénario est applicable aux fractions molaires de divers aromatiques, comme le benzène (A1), le naphthalène (A2), le phénanthrène (A3) et le pyrène (A4), en fonction du taux de déformation et du volume d'hydrogène présent dans le combustible. La réduction du temps de résidence et la teneur de  $H_2$  dans le combustible réduisent la formation du benzène (A1) d'une valeur de 0.925 PPM pour la flamme F01 ( $a=20$  s<sup>-1</sup>) à une valeur de 0.705 PPM ( $a= 100$  s<sup>-1</sup>) Fig. 4.3 (c et d), et dans le cas de la flamme F04 où la quantité

d'hydrogène est augmenté, la valeur de A1 passe de 0.850 PPM ( $a= 20s^{-1}$ ) à 0.550 PPM ( $a= 100 s^{-1}$ ) Fig. 4.4 (c et d). Ceci est principalement dû au fait que le benzène est produit par la suite par R234. L'évolution de la production et la consommation de A2, A3 et A4 prend le même chemin que le benzène. D'après les résultats obtenus, on constate que lorsque le taux de déformation augmente, les épaisseurs des flammes et les valeurs maximales de A1, A2, A3 et A4 diminuent par conséquent la valeur de la fraction volumique réduite d'une manière importante Fig. 4.3 (c et d) et Fig. 4.4 (c et d).

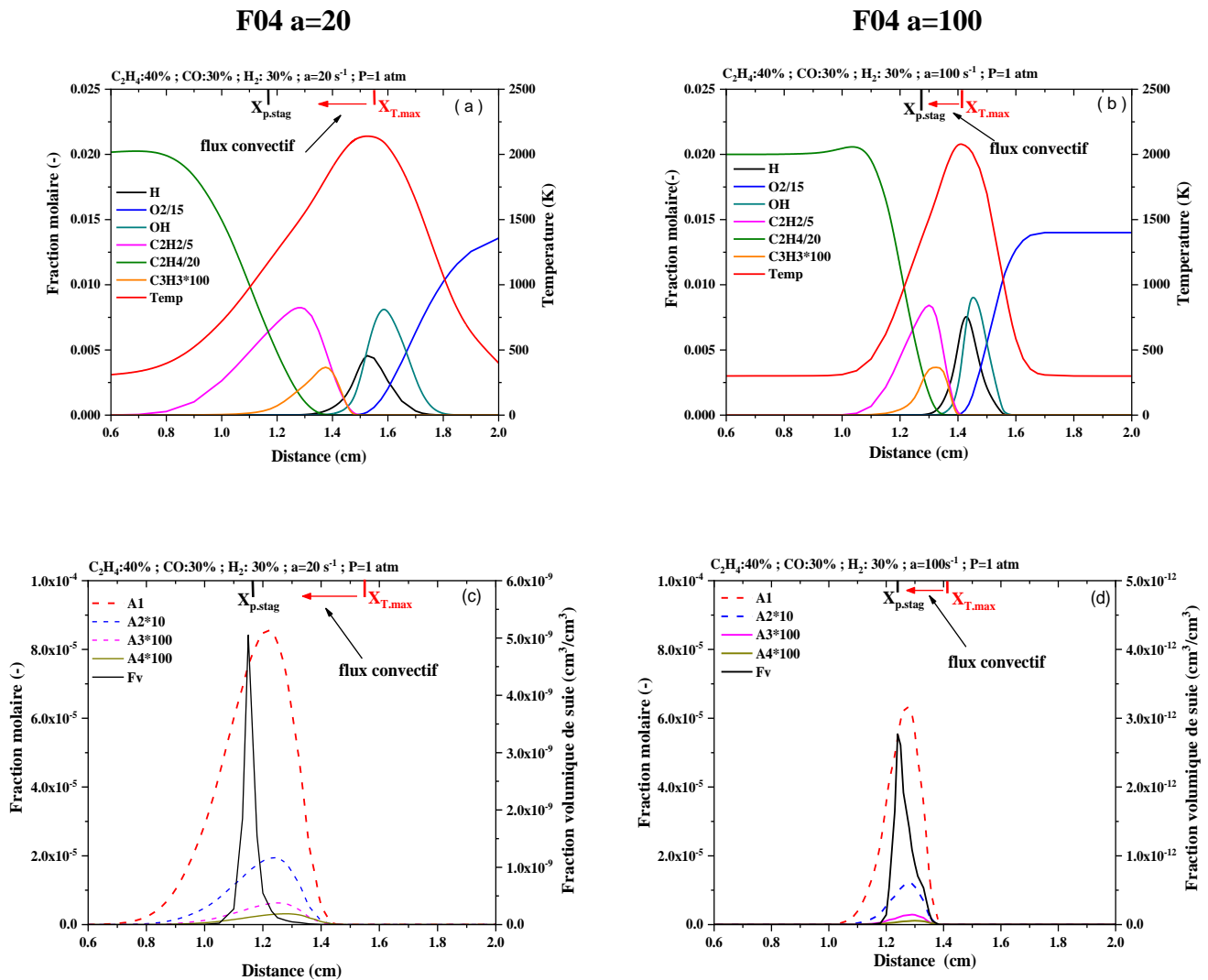
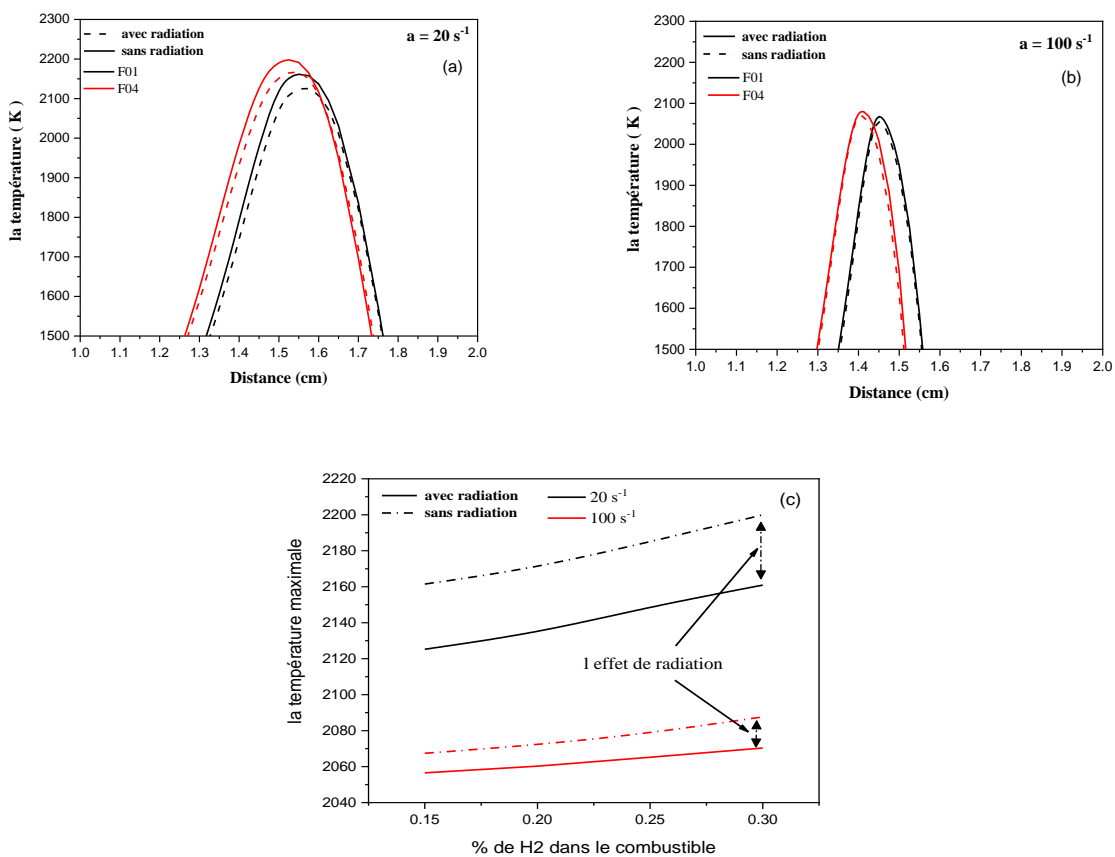


Figure 4.4 : Les effets de la composition du combustible sur la formation de suie à différents  $a$  ( $s^{-1}$ )

#### 4.4. L'effet du rayonnement sur la structure de flamme et la formation de suie

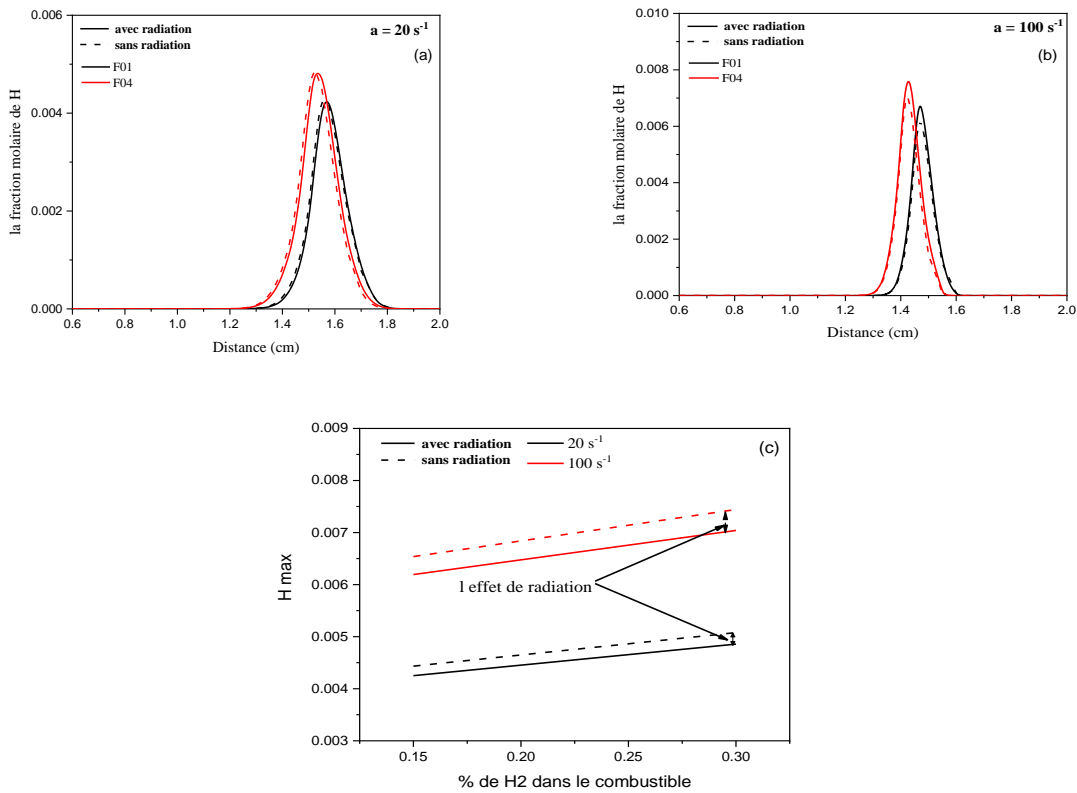
Dans cette partie, nous étudierons l'effet du rayonnement sur la structure de la flamme et la formation de suie pour différentes valeurs du taux de déformation et de mélanges. Lorsque le taux de déformation est faible, le temps de séjour est long, ce qui permet aux réactions chimiques d'être complètes en favorisant ainsi l'augmentation de l'épaisseur de flamme. Ce phénomène entraîne une perte de chaleur considérable en faveur du rayonnement due au type de rayonnement issue des espèces suivantes (CO, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CO), par contre, lorsque le taux de déformation élevée lui correspond un temps de séjour faible provoquant des réactions chimiques incomplètes et donnant une faible épaisseur de la flamme ; état réduit considérablement les pertes de rayonnement Fig. 4. 5.

En général, il est observé que l'effet du rayonnement est faible à différents taux de déformation, puisque les températures maximales, (2141k et 2198k), ne diffèrent que de 57 degrés et cela avec et sans le rayonnement et à un taux de déformation de 20 s<sup>-1</sup>. Ce phénomène est similaire pour le cas ou a=100 s<sup>-1</sup> (2060 k et 2070 k).

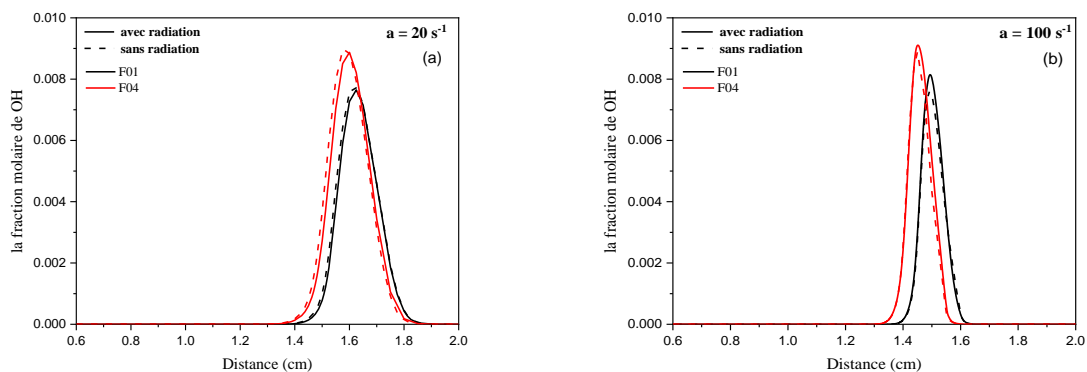


**Figure 4.5 :** l'effet du rayonnement sur la température de flamme pour différent taux de déformation.

Les figures 4.6 et figures 4.7 montrent l'effet du rayonnement sur la fraction molaire de H et OH. Les évolutions de H et OH suivent toujours le comportement en température. Nous y notons également, que l'effet du rayonnement se réduit à des vitesses de déformation élevées, suite au temps de séjour faible, ce qui conduit à l'absence de l'effet du rayonnement.



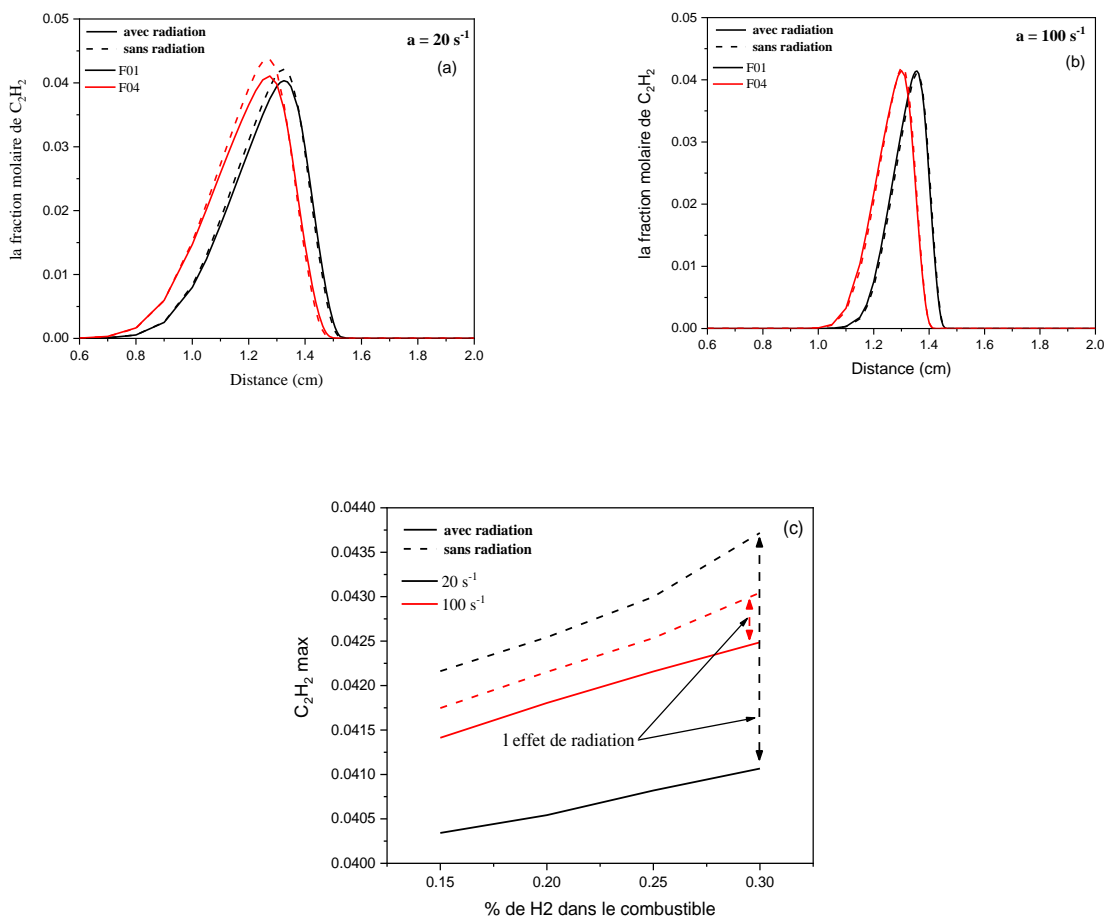
**Figure 4. 6:** l'effet du rayonnement sur la fraction molaire maximale de H pour différents taux de déformation.



**Figure 4. 7 :** l'effet du rayonnement sur  $Y_{\text{OH}}$  à différents taux de déformation et de mélanges.

#### 4.5 Formation de suie :

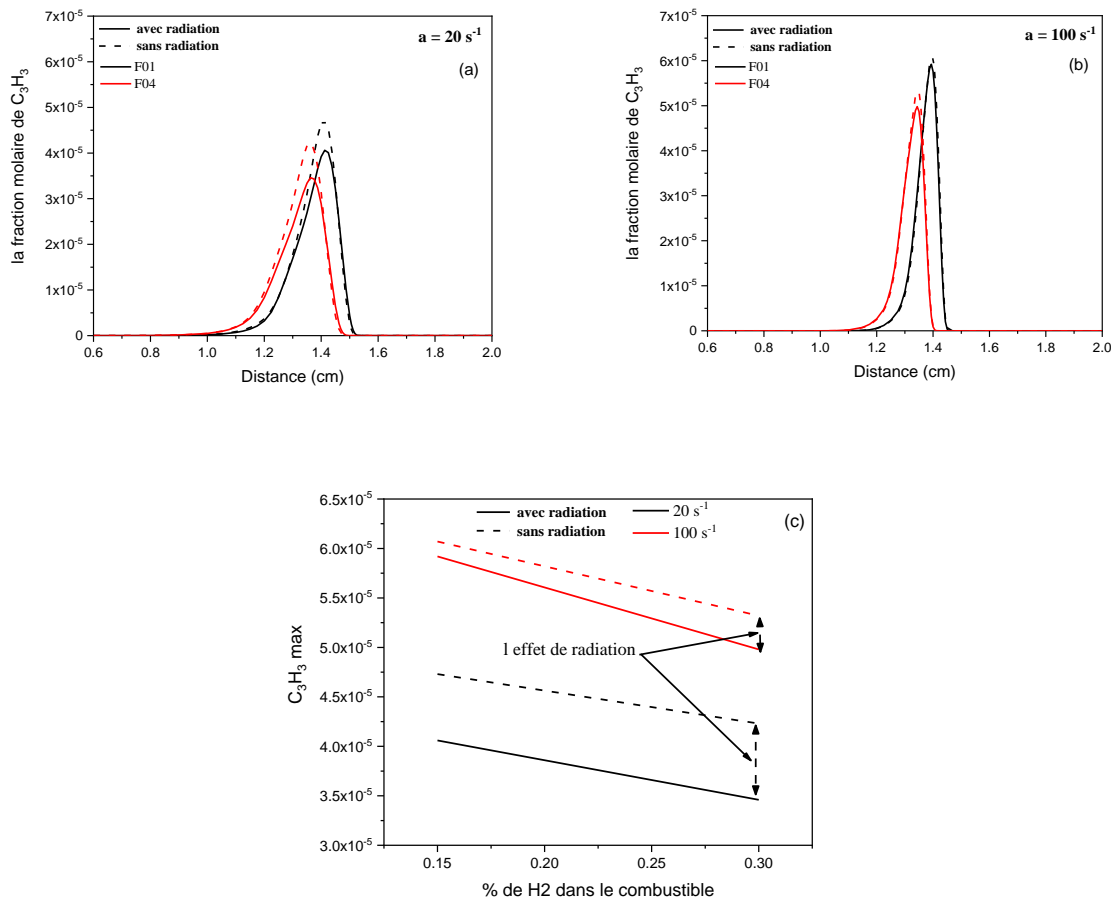
Nous remarquons sur la fig. 4.8, qu'en présence du rayonnement, la production d'acétylène augmente et elle est plus évidente à faibles vitesses de déformation. À un taux de déformation de  $20 \text{ s}^{-1}$ , sa valeur maximale est de 0.041 et 0.0437 avec et sans rayonnement respectivement pour F04 d'une différence estimée à 0.0027. Quant aux taux de déformation élevé, les valeurs maximales de  $\text{C}_2\text{H}_2$  avec et sans rayonnement sont de 0,0425 et de 0,043 respectivement, d'une différence de 0,0005.



**Figure 4. 8:** l'effet du rayonnement sur  $Y_{\text{C}_2\text{H}_2}$  à différents taux de déformation

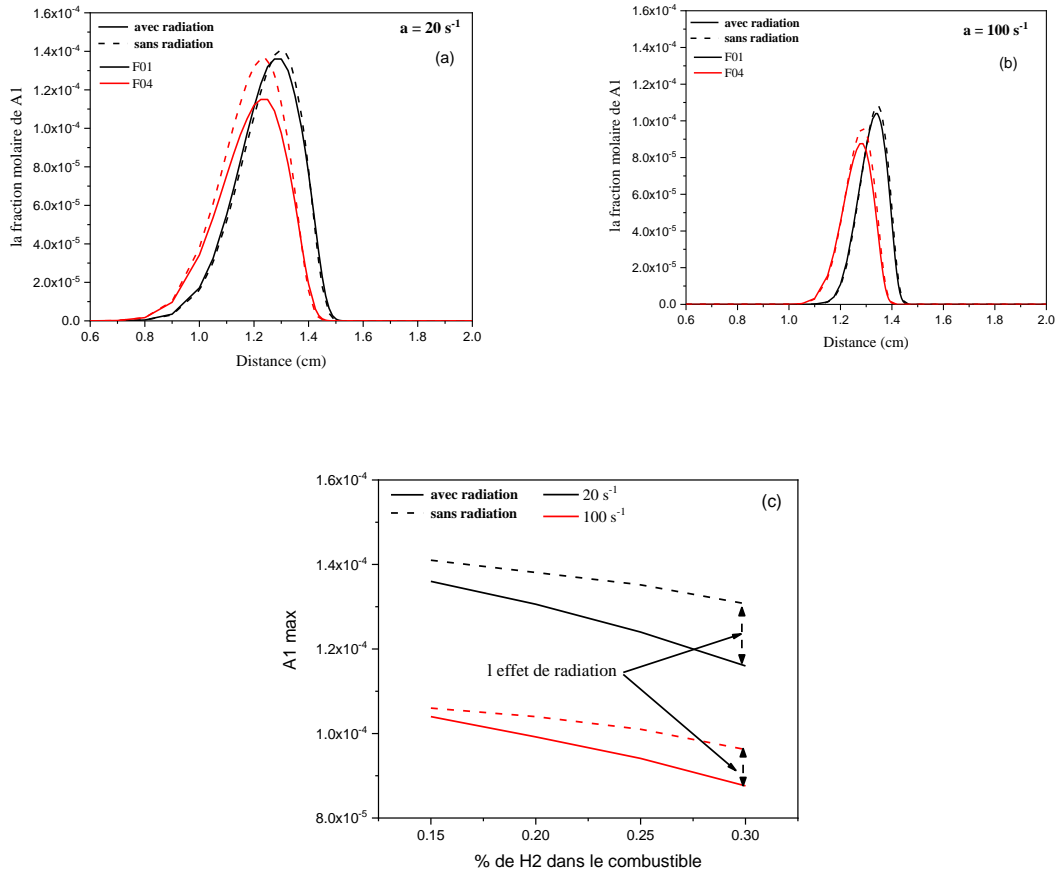
La figure 4. 9 représente la variation de  $\text{C}_3\text{H}_3$  avec et sans rayonnement. On y constate, que À un taux de déformation de  $20 \text{ s}^{-1}$ , la fraction maximale ( $Y_{\text{C}_3\text{H}_3}$ ) max est de 34.6 ppm en présence du rayonnement et 42.3 ppm en son absence pour F04 avec une différence estimée à

7.7 ppm. Quant au taux de déformation ( $100 \text{ s}^{-1}$ ), les valeurs maximales ( $Y_{\text{C}_3\text{H}_3}$ ) max est 49.8 ppm et 53.2 ppm sans rayonnement, avec une différence de 3.4 ppm.



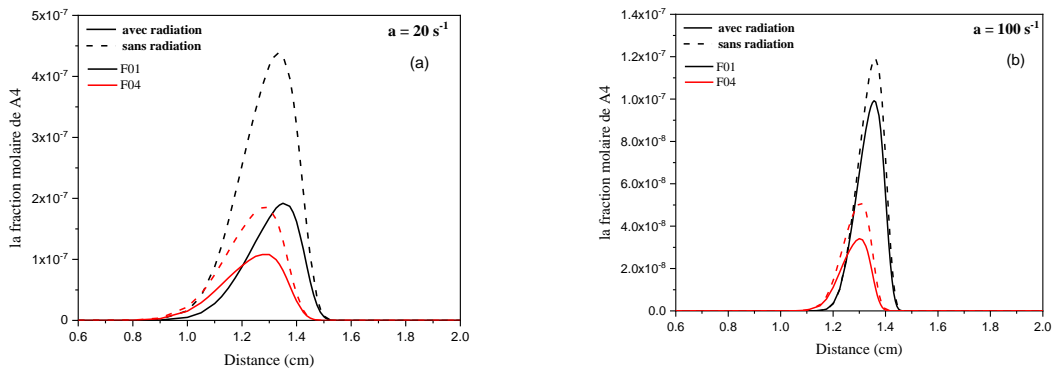
**Figure 4. 9:** l'effet du rayonnement sur  $Y_{\text{C}_3\text{H}_3}$  à différents taux de déformation.

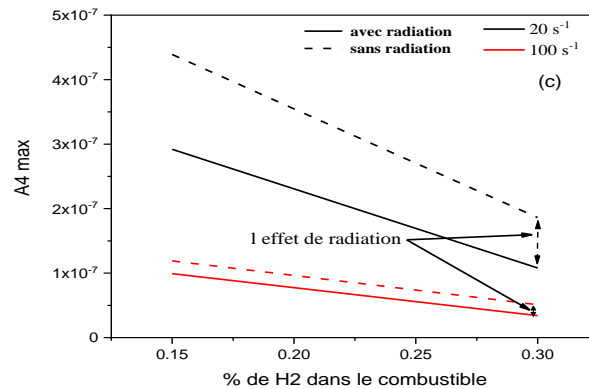
Le même scénario pour les fractions molaires de nombreux composés aromatiques, tels que (A1), (A2) et (A4) (les figures 4.10 et figures 4.11), sont calculés en fonction du taux de déformation et du volume d'hydrogène dans le carburant. La réduction du temps de séjour, représentée par l'augmentation du taux de déformation et de la teneur en  $\text{H}_2$  dans le carburant, réduit la formation de benzène (A1) pour un taux de déformation de  $20 \text{ s}^{-1}$ ; la valeur maximale de  $Y_{\text{C}_3\text{H}_3}$  est de 34.6 ppm en présence du rayonnement et de 42.3 ppm en son absence pour F04; avec une différence estimée à 7.7 ppm. Quant aux taux de déformation élevée ( $100 \text{ s}^{-1}$ ), la valeur maximale de  $Y_{\text{C}_3\text{H}_3}$  est de 49.8 ppm en présence du rayonnement et de 53.2 ppm en son absence pour F04; avec une différence estimée à 3.4 ppm.



**Figure 4. 10** : l'effet du rayonnement sur la fraction molaire de a1 pour différents taux de déformation.

Le développement de la production et de la consommation des A2, A3 et A4 suit le même chemin que celui de l'essence. D'après les résultats obtenus, fig. 4.11, nous voyons que lorsque le taux de déformation augmente l'effet du rayonnement.





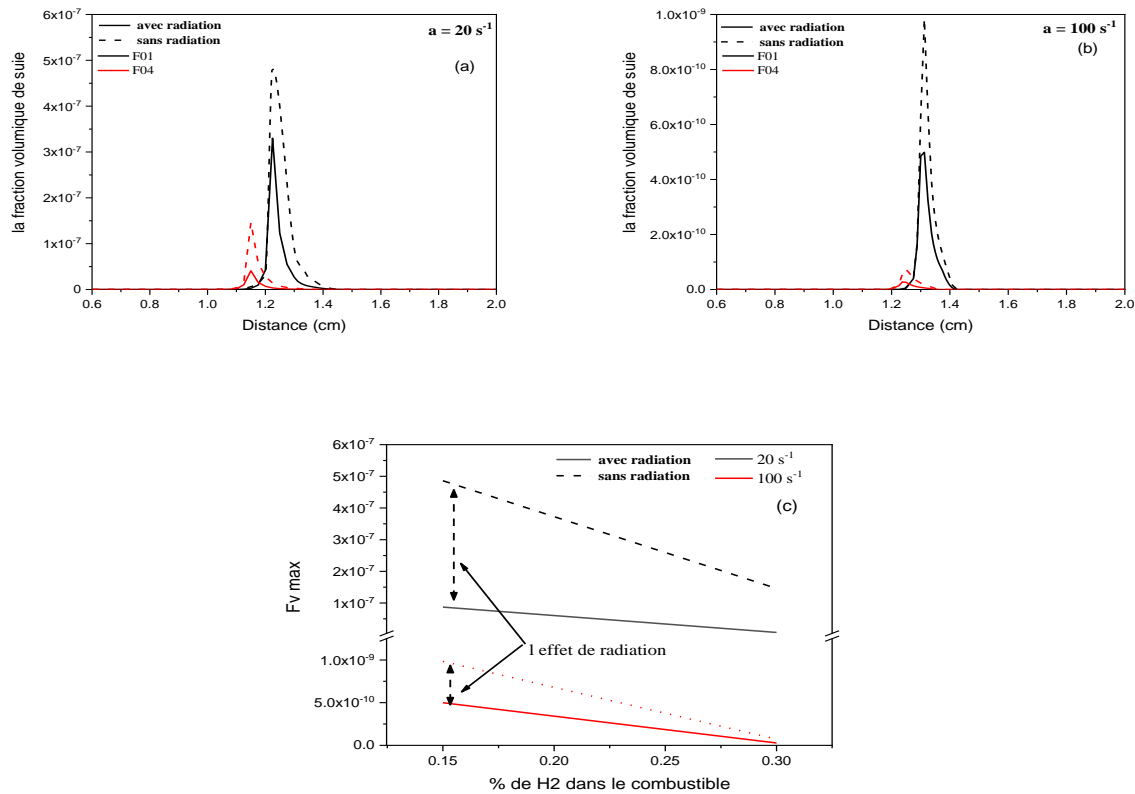
**Figure 4. 11 :** l'effet du rayonnement sur la fraction molaire de A4 pour différents taux de déformation

#### 4.6 La fraction volumique de suie :

Les variations de fraction volumique de suie pour les mélanges 01 et 04 sont illustrées dans la figure 4.12 suivant des taux de déformation différents en présence et en absence de rayonnement.

Il a été démontré précédemment qu'une augmentation de la quantité d'hydrogène ou du taux de déformation entraîne une réduction de la fraction volumique de suie. Nous avons aussi observé qu'en l'absence de rayonnement, la fraction volumique de suie est plus élevée qu'avec l'effet du rayonnement. Ce phénomène est causé par les effets de la température, plus la température est élevée, plus la production de suie est élevée.

Il faut noter aussi que sur la figure 4.12 (c) la fraction volumique maximale est affectée par l'ajout de la quantité d'hydrogène dans le carburant. Il est observé que plus la quantité d'hydrogène ou le taux de déformation augmente, plus l'effet de la radiation diminue relativement au taux de déformation qui est corrélé avec la durée du séjour, plus le taux de déformation est faible, plus le temps de séjour est élevé.



**Figure 4. 12:** l'effet du rayonnement sur la fraction volumique de suie à différents taux de déformation et de mélanges.

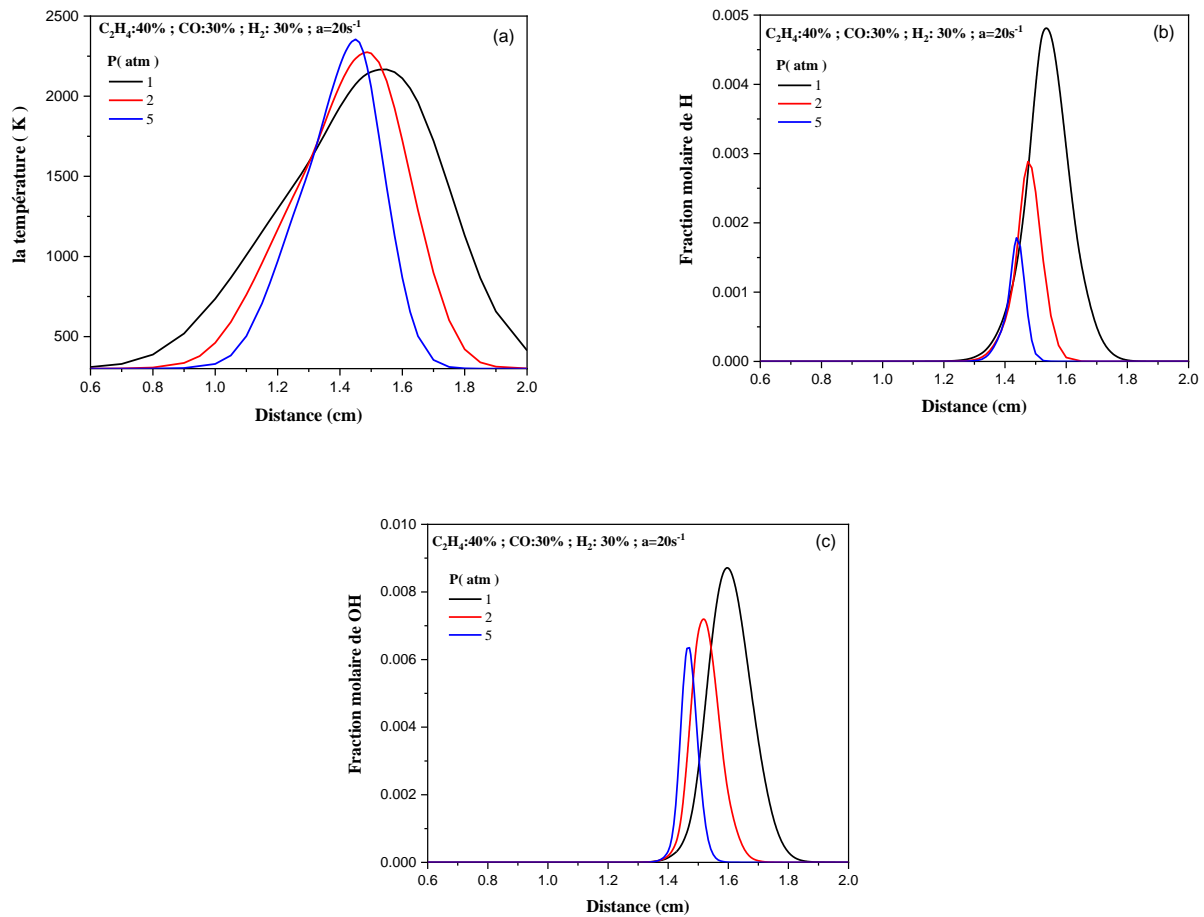
#### 4.7 L'effet de pression sur la structure de flamme et la formation de suie :

Cette section examine les effets de la pression sur la structure des flammes et la formation de suie pour la composition moyenne de la flamme F04, pour les pressions ambiantes de 1 atm, 2 atm et 5 atm, les structures de flamme et de suie sont représentées en fonction de la distance spatiale  $x$ . Deuxièmement, les variations des variables maximales en fonction de la pression pour différentes compositions sont présentées.

La figure 4.13 (a) montre qu'une augmentation de la pression de 1 atm à 2 atm, puis de 5 atm entraîne une augmentation de la température maximale de 2160 K à 2274 K, puis de 2354 K. alors que l'épaisseur de la flamme (zone de réaction) devient mince suivant l'augmentation de la pression et elle se déplace vers la zone de carburant, l'effet de la pression est opposé à celui de la vitesse de déformation. L'épaisseur de la zone d'interaction est proportionnelle à la racine

carrée de la diffusivité divisée par la vitesse de déformation ( $d \propto (D/a)^{1/2}$ ). De plus, la diffusivité est inversement proportionnelle à la pression ambiante ( $D \propto P^{-1}$ ), ce qui signifie qu'une augmentation de la pression entraîne une réduction de l'épaisseur de la flamme à une vitesse de déformation constante.

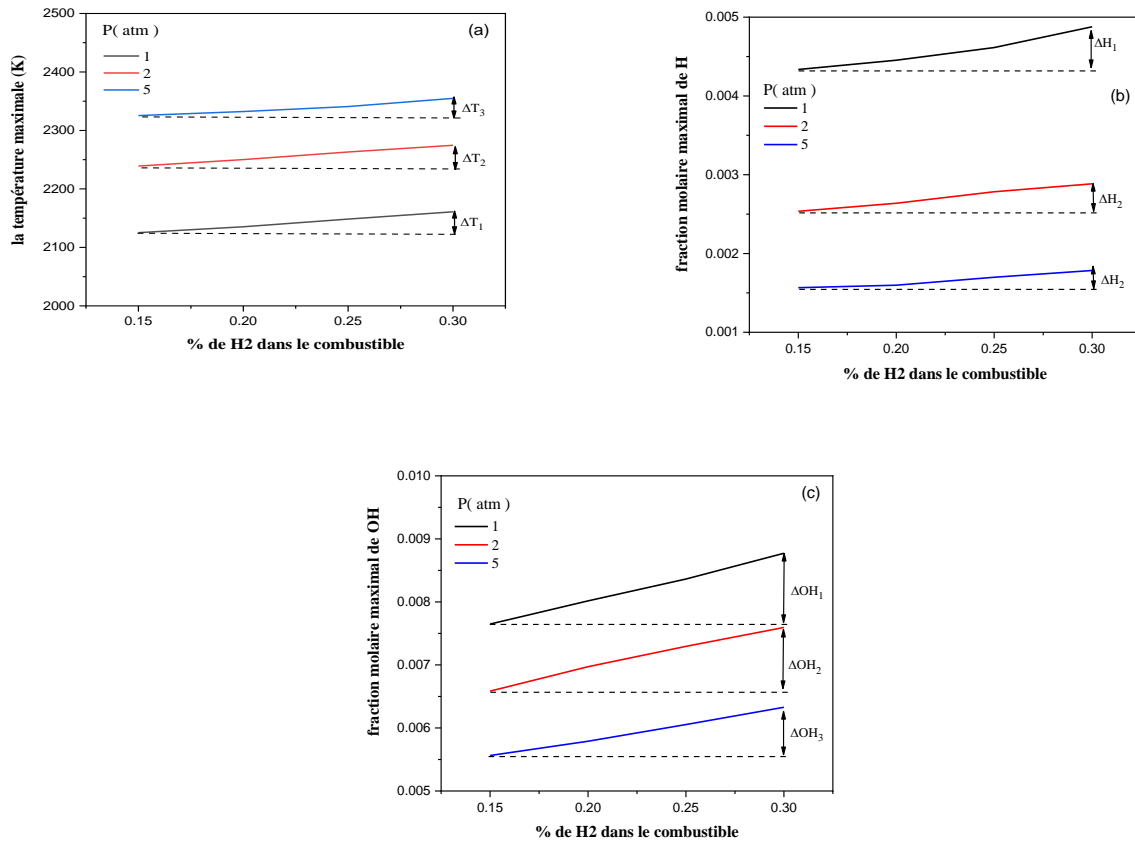
Les radicaux H et OH sont les espèces qui déterminent la force des réactions de combustion, ces derniers sont produits dans la zone de comburant et leur production réduire avec l'augmentation de la pression.



**Figure 4.13:** les variations de température (a) et de fraction molaire de H (b) , OH (c) pour différentes pressions.

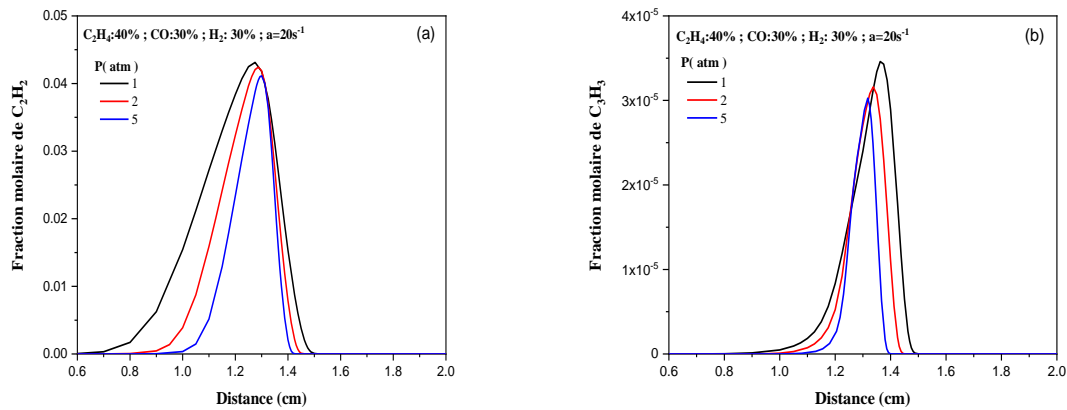
Les figures 4.13 (b) et (c) montrent quand la pression passe de 1 atm à 2 atm puis à 5 atm, le radical H atteint une valeur maximale de 4900 ppm, puis se réduit à 2880 ppm et finalement

atteint 1800 ppm, respectivement. Pour la valeur maximale du radical OH est de 8770 ppm, puis elle diminue jusqu'à 7600 ppm, afin d'atteindre la valeur 6300 ppm, respectivement.



**Figure 4.14:** Variations des valeurs maximal de température (a) et de fraction molaire de H (b), OH (c) pour différentes pressions et quantité de de H<sub>2</sub> dans le combustible.

La figure 4.14 présente l'impact de la pression sur les valeurs maximales pour divers mélanges. On peut observer que l'ajout d'hydrogène dans le carburant diminue l'impact de la pression, La température maximale augmente de  $\Delta T_1 = 35$  K lorsque la pression passe de 1 atm à 2 atm puis à 5 atm, puis elle diminue respectivement jusqu'à  $\Delta T_2 = 30$  K et  $\Delta T_3 = 22$  K. Tout comme pour les radicaux H et OH, ou les valeurs maximales augmentent de  $\Delta H_1 = 540$  ppm, puis diminuent de  $\Delta H_2 = 340$  ppm, puis se réduit à une valeur de 150 ppm, respectivement. ( $\Delta OH_1 = 1120$  ppm pour la OH, puis elle diminue jusqu'à  $\Delta H_2 = 0,001010$ ppm, puis elle diminue jusqu'à 770, respectivement).

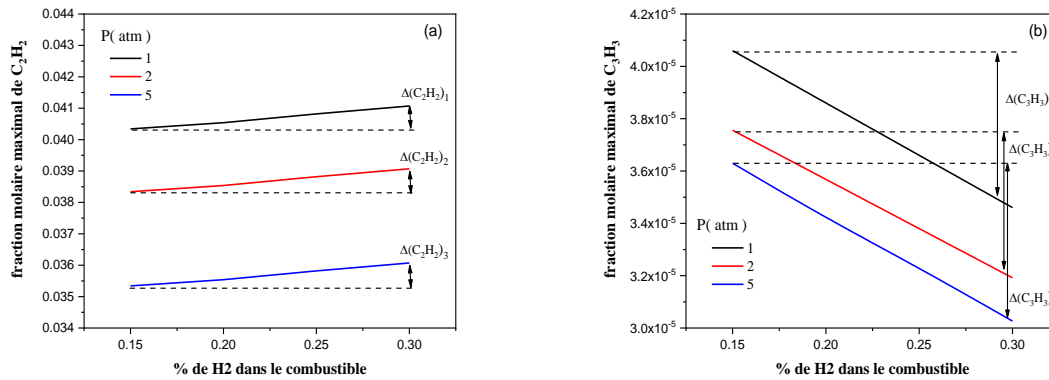


**Figure 4.15** : les variations de fraction molaire de  $C_2H_2$  (a) et  $C_3H_3$  (b) pour différentes pressions.

La figure 4.15 présente l'impact de la pression sur les espèces  $C_2H_2$  et  $C_3H_3$ , avec trois valeurs de pression : 1atm, 2atm et 5atm pour la flamme F04 et avec un taux de déformation de  $20\text{ s}^{-1}$ . L'augmentation de la pression réduit la production de  $C_2H_2$  et  $C_3H_3$  et réduit également l'épaisseur de la flamme. Cela s'explique par le fait que l'augmentation de la pression favorise les réactions de recombinaison et empêche les réactions de déséquilibre qui conduisent à la formation de ces éléments.

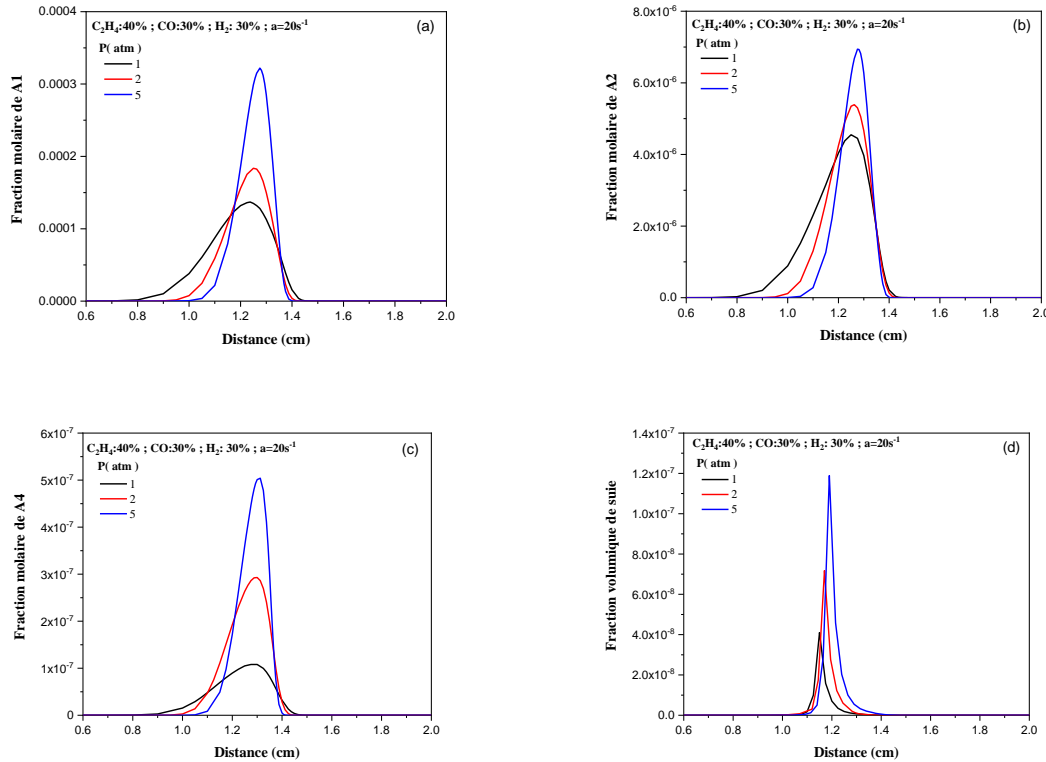
La fraction molaire maximale de l'acétylène, qui est fortement influencée par la pression, est représentée dans les Figures 4.15 (a) : elle passe de 0,041 à 0,039 puis de 0,319 à 0,319 ppm. En revanche, le propergyl ( $C_3H_3$ ) diminue de 0,346 à 0,319 ppm puis de 0,302 ppm à une pression ambiante de 1 atm, 2 atm et 5 atm, respectivement.

Suivant l'augmentation de  $H_2$  dans le mélange et sous l'effet de la pression sur la formation du précurseur de suie  $C_2H_2$  est représenté par la figure 4.16(a), sa réduction est très significative par cette dernière. Sa valeur passe de 1000 ppm pour 1atm à 500 ppm à 5 atm. La courbe 4.16(b) illustre la réduction de  $C_3H_3$  en fonction de l'augmentation simultanée de  $H_2$  et la pression, ou les effets de ces derniers sont très significatives relativement à l'espèce  $C_2H_2$ .



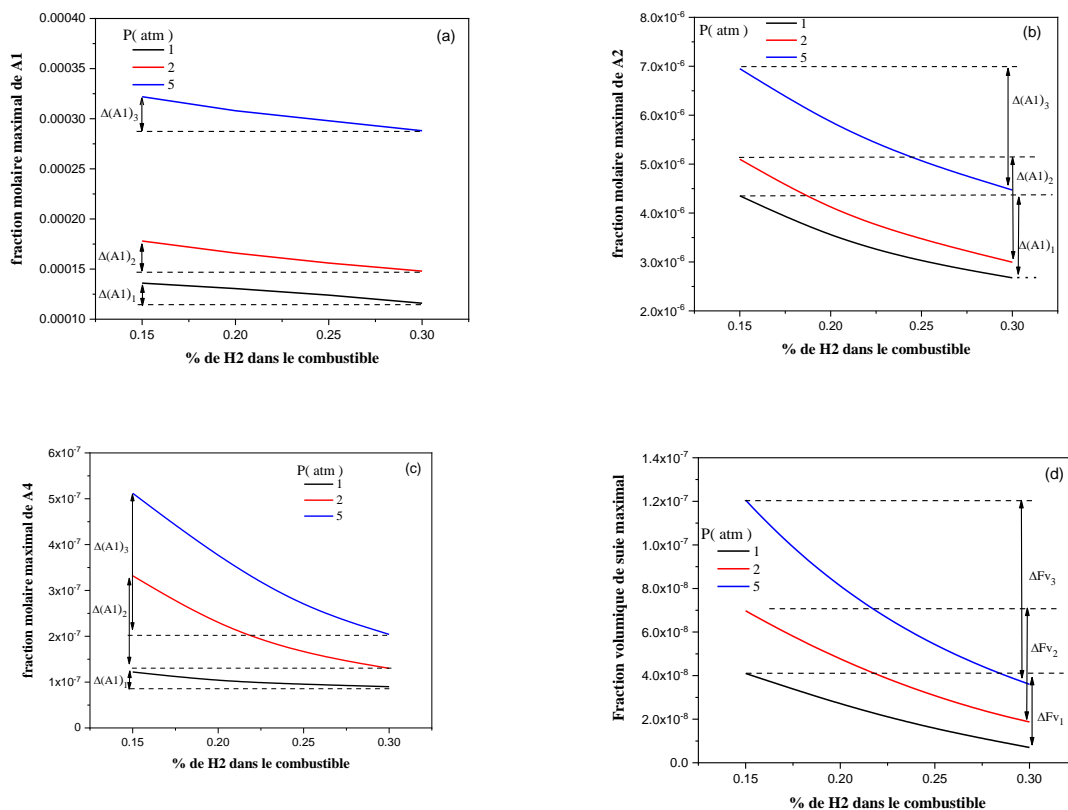
**Figure 4.16:** les variations des valeurs maximal de fraction molaire de  $C_2H_2$  (a) et  $C_3H_3$  (b) pour différentes pressions en fonction de  $H_2$  dans le combustible.

Le benzène se forme à une pression plus élevée qu'à une pression atmosphérique. En augmentant la pression de 1 atm à 2 atm puis à 5 atm, les valeurs maximales de A1 atteignent  $1.36 \text{ E-4}$ , puis augmentent à  $1.48 \text{ E-4}$  et finalement à  $2.88 \text{ E-4}$ , comme illustré dans la Figure 4.17. En fonction de la contribution de l'hydrogène dans le combustible, la valeur maximale de A1 augmente de  $\Delta(A1)1 = 0.2 \text{ E-4}$ , puis augmente de  $\Delta(A1)2 = 0.28 \text{ E-4}$ , puis augmente de  $\Delta(A1)3 = 0.34 \text{ E-4}$ , respectivement.



**Figure 4.17:** les variations de fraction molaire de A1 (a) et A2 (b), A4 (c) et la fraction volumique de suie (d) pour différentes pressions.

Étant donné que le benzène est la première substance aromatique produite, il est essentiel de comprendre ses processus de formation dans les flammes d'hydrocarbures, car il est responsable de la production d'aromatiques plus lourds tels que les HAP. Les figures 4.17(a) et 4.17(c) illustrent que le benzène (A1) et A4 sont très affecté par la pression relativement que le A2 représenté par la figure 4.17(b). La valeur maximale de FV s'élève à 0,007 ppm, puis à 0,018 ppm, puis à respectivement 0,036 ppm. Pour une variation de pression 1 atm, 2 atm et 5 atm respectivement figure 4.18.



**Figure 4.18:** les variations des valeurs maximal de fraction molaire de A1 (a) et A2 (b) , A4 (c) et la fraction volumique de suie (d) pour différentes pressions en fonction de H<sub>2</sub> dans le combustible.

#### 4.8 L'Effet chimique de l'hydrogène sur la température et la formation de suie :

On examine les réactions chimiques du  $H_2$  à la pression atmosphérique en fonction des différentes proportions d'hydrogène présent dans le mélange carburant. Les effets chimiques sur la structure et les émissions de flamme sont caractérisés par des espèces inertes artificielles  $F_{H_2}$ , qui présente des caractéristiques similaires (transport, rayonnement et thermochimique) à celle du  $H_2$ . Par conséquent, l'effet chimique explique la disparité entre les propriétés de flamme mesurées avec l'espèce artificielle  $F_{H_2}$ .

L'effet chimique de  $H_2$  a un effet direct sur la température, il augmente progressivement relativement à l'augmentation de la quantité de  $H_2$  dans le combustible figure 4.19 (a), alors que l'espèce artificielle  $F_{H_2}$  abaisse les valeurs maximales de température, contrairement à l'hydrogène qui les augmente. L'hydrogène participe à la réaction qui accroît la production de l'espèce H, qui joue un rôle essentiel dans la croissance de la surface de la suie grâce suivant le mécanisme HACA. Or l'effet chimique a un effet très significatif sur la formation du le premier cycle aromatique  $C_6H_6(A1)$  figure 4.18 (b), sa valeur maximale et  $A1_{max} = 924$  ppm en présence d'hydrogène et lorsqu'il est remplacé par  $F_{H_2}$ , elle se réduit à 863 ppm. Pour le pyrène, figure 4.18 (c), sa valeur augmente lorsque l'hydrogène est remplacé par  $F_{H_2}$ . En particulier, nous trouvons que  $A4_{max} = 786$  ppm et  $A4_{max} = 135$  ppm en présence de  $H_2$  ou  $F_{H_2}$ , respectivement.

Les effets de  $F_{H_2}$  sur la distribution de la fraction volumique de suie sont illustrés à la figure 4.19 (f). Il est clair que l'augmentation de  $H_2$  ou  $F_{H_2}$  dans le mélange réduit la formation de suie, l'effet chimique de  $H_2$  sur la formation de la fraction volumique de suie augmente progressivement suivant l'ajout de  $H_2$  dans le mélange, pour 15% de dilution et on présence de  $H_2$ , la valeur de  $F_{v_{max}}$  est 891ppm, alors qu'on présence de  $F_{H_2}$  la valeur de  $F_{v_{max}}$  prend la valeur 850ppm. Pour une valeur 30% de  $H_2$  dans le combustible l'intervalle devient plus grand.

de  $C_2H_2$  et  $C_3H_3$  que l'ajout de  $FH_2$  et lorsque l'on ajoute de l'hydrogène, la formation de suie est affectée par l'effet de dilution et l'effet chimique. Dans le cas du remplacement par du  $FH_2$ , seule la formation de suie est affectée par l'effet de dilution et pour cette raison, on constate que l'hydrogène est plus efficace que le  $FH_2$  ajouté dans la formation de suie.

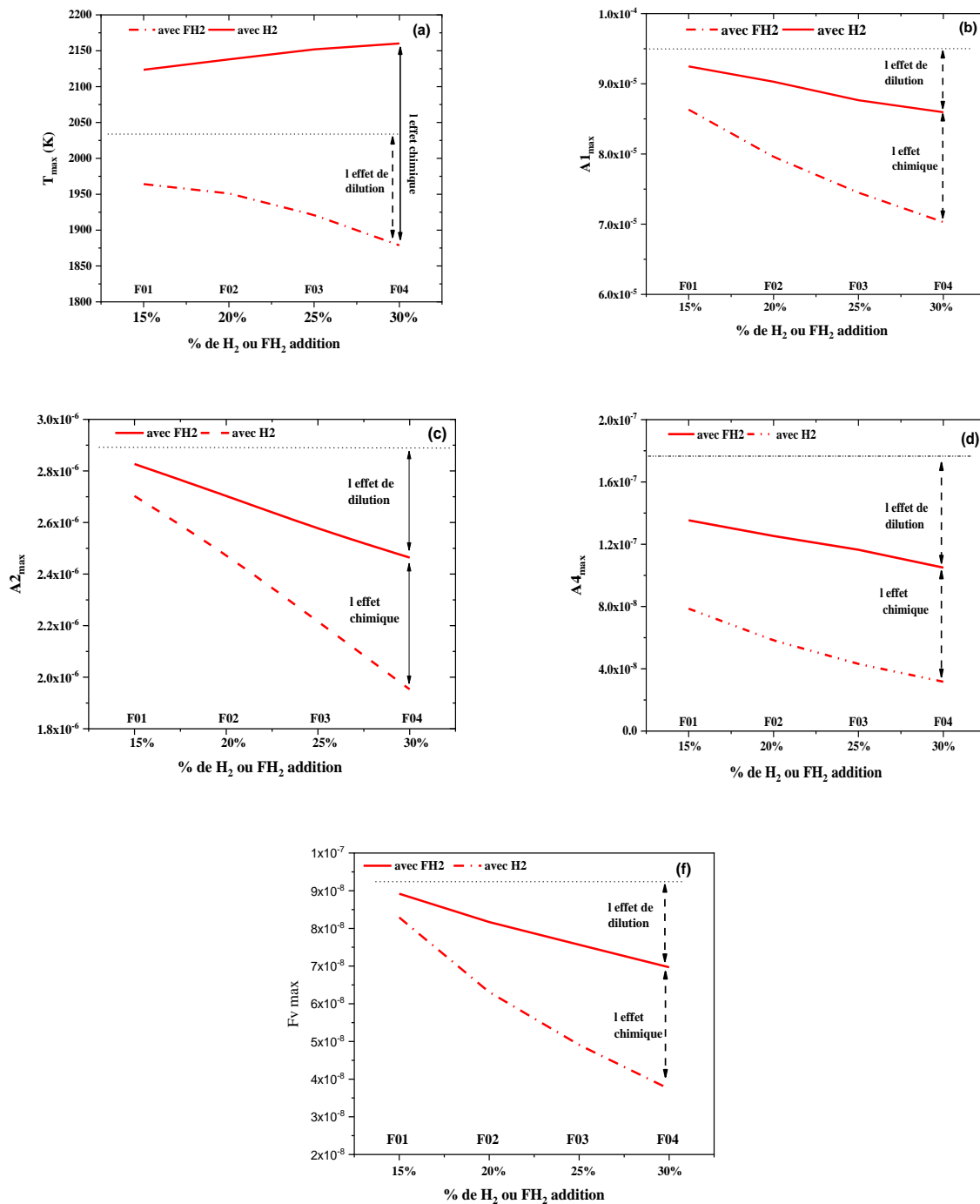


Figure 4.19: Effet chimique de H<sub>2</sub> ajouté au combustible sur température de la flamme et formation de suie

## Conclusion :

Cette étude vise à prévenir la pollution et à améliorer les techniques de contrôle des émissions et vise à réduire les polluants de combustion et la formation de suie.

Cela se fait en étudiant les effets du taux de déformation et de la composition des mélanges, en plus des effets chimiques de l'hydrogène et du monoxyde de carbone, ainsi que l'effet de la pression et du rayonnement sur la structure de la flamme de diffusion laminaire et la formation de suie du mélange C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Syngas.

Les conclusions que l'on peut tirer sont les suivantes :

- Le front de flamme, représenté par la température maximale, se déplace vers le côté combustible en raison de l'augmentation de l'hydrogène.
- L'augmentation du taux de déformation entraîne une diminution de l'épaisseur de la flamme et de la zone de réaction, ce qui est dû aux effets de cela s'explique par le fait qu'à des taux de déformation faibles, le temps de séjour est élevé, ce qui entraîne des réactions chimiques complètes, tandis qu'à des taux de déformation élevées, le temps de séjour est faible, ce qui rend les réactions chimiques rapides et incomplètes.
- On sait que l'ajout d'hydrogène, par trois mécanismes principaux : l'effet thermique, l'effet de dilution et l'effet chimique direct, a un effet sur la formation de suies. Les résultats ont démontré cela.
- La suie est considérablement réduite en augmentant la teneur en hydrogène du carburant et en augmentant le taux de déformation.
- Les effets chimiques jouent un rôle important dans la réduction de la température maximale de la flamme et de la formation de suie

- L'effet de la pression est opposé à celui de la vitesse de déformation. L'épaisseur de la zone d'interaction est proportionnelle à la racine carrée de la diffusivité divisée par la vitesse de déformation ( $d \propto (D/a)^{1/2}$ ). De plus, la diffusivité est inversement proportionnelle à la pression ambiante ( $D \propto P^{-1}$ ), ce qui signifie qu'une augmentation de la pression entraîne une réduction de l'épaisseur de la flamme à une vitesse de déformation constante.
- L'hydrogène ajouté entre dans la chimie de la combustion et devrait également participer à la chimie de la suie pour ; le  $FH_2$  qui ne participe pas aux réactions chimiques. L'hydrogène ajouté est impliqué dans la formation de la suie principalement par la voie R2 et la présence de H conduit directement à la croissance de la surface de la suie par le mécanisme HACA.

## Les références:

- [1] U.S. Energy Information Administration, International Energy Outlook; 2016.
- [2] Reitz RD. Directions in internal combustion engine research. *Combust Flame* 2013;160:1-8.
- [3] Kennedy, Ian M. "The health effects of combustion-generated aerosols." *Proceedings of the Combustion Institute* 31.2 (2007): 2757-2770. doi:10.1016/j.proci.2006.08.116
- [4] Jörg Appel, Henning Bockhorn, Michael Frenklach, Kinetic modeling of soot formation with detailed chemistry and physics: laminar premixed flames of C<sub>2</sub> hydrocarbons, *Combustion and Flame*, Volume 121, Issues 1–2, 2000, Pages 122-136,
- [5] Lei Xu, Fuwu Yan, Mengxiang Zhou, Yu Wang, Suk Ho Chung, Experimental and soot modeling studies of ethylene counterflow diffusion flames: Non-monotonic influence of the oxidizer composition on soot formation, *Combustion and Flame*, Volume 197, 2018, Pages 304-318,
- [6] Yang Wang, Xiaofang Liu, Mingyan Gu & Xueliang An (2018): Numerical Simulation of the Effects of Hydrogen Addition to Fuel on the Structure and Soot Formation of a Laminar Axisymmetric Coflow C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/(O<sub>2</sub>-CO<sub>2</sub>) Diffusion Flame, *Combustion Science and Technology*, DOI: 10.1080/00102202.2018.1532413
- [7] Hongsheng Guo, Fengshan Liu, Gregory J. Smallwood, Ömer L. Gülder, Numerical study on the influence of hydrogen addition on soot formation in a laminar ethylene–air diffusion flame, *Combustion and Flame*, Volume 145, Issues 1–2, 2006, Pages 324-338, ISSN 0010-2180, <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2005.10.016>.
- [8] Zhang, Yindi, Fengshan Liu, and Chun Lou. "Experimental and numerical investigations of soot formation in laminar coflow ethylene flames burning in O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> atmospheres at different O<sub>2</sub> mole fractions." *Energy & Fuels* 32.5 (2018): 6252-6263. <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.7b04069>
- [9] Selsabil Boussetla, Abdelbaki Mameri, Amar Hadeif, NO emission from non-premixed MILD combustion of biogas-syngas mixtures in opposed jet configuration, *International Journal of Hydrogen Energy*, Volume 46, Issue 75, 2021.
- [10] Yang Wang, Mingyan Gu, Ling Chao, Jiajia Wu, Yuyu Lin, Xiangyong Huang, Different chemical effect of hydrogen addition on soot formation in laminar coflow methane and ethylene

diffusion flames, International Journal of Hydrogen Energy, Volume 46, Issue 29, 2021, Pages 16063-16074, ISSN 0360-3199, <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2021.02.014>.

[11] yindi zhang, Fengshan Liu, and Lou Chun, Experimental and Numerical Investigations of Soot Formation in Laminar Coflow Ethylene Flames Burning in O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> Atmospheres at Different O<sub>2</sub> Mole Fractions, *Energy Fuels* 2018, 32, 5, 6252–6263 <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.7b04069>

[12] Appel, J., Bockhorn, H., Frenklach, M. (2000). Kinetic modeling of soot formation with detailed chemistry and physics: Laminar premixed flames of C<sub>2</sub> hydrocarbons.

[13] Andisheh Khanehzar, Francisco Cepeda, Seth B. Dworkin, The influence of nitrogen and hydrogen addition/dilution on soot formation in coflow ethylene/air diffusion flames, *Fuel*, Volume 309, 2022, 122244, ISSN 0016-2361, <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2021.122244>.

[14] Liu F, et al., Effect of hydrogen and helium addition to fuel on soot formation in an axisymmetric coflow laminar methane/air diffusion flame, *International Journal of Hydrogen Energy* (2014), <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.12.151>

[15] YING, Yaoyao et LIU, Dong. Detailed influences of chemical effects of hydrogen as fuel additive on methane flame. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2015, vol. 40, no 9, p. 3777-3788. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.01.076>

[16] Mingrui Wei, Jinping Liu, Guanlun Guo, Song Li, The effects of hydrogen addition on soot particle size distribution functions in laminar premixed flame, *International Journal of Hydrogen Energy*, Volume 41, Issue 14, 2016

[17] H. C. Lee, A. A. Mohamad, and L. Y. Jiang, Comprehensive Comparison of Chemical Kinetics Mechanisms for Syngas/Biogas Mixtures, *Energy & Fuels* 2015 29 (9), 6126-6145.

[18] Lei Xu, Fuwu Yan, Yu Wang, Suk Ho Chung, Chemical effects of hydrogen addition on soot formation in counterflow diffusion flames: Dependence on fuel type and oxidizer composition, *Combustion and Flame*, Volume 213

[19] Haynes, B. S. (2018). Combustion research for chemical processing. *Proceedings of the Combustion Institute*. doi:10.1016/j.proci.2018.06.183

[20] Huy Quang Dong. Evaluation du risque d'inflammation des fumées riches dans un milieu confiné sous-ventilé à l'aide de la simulation numérique. Autre. ISAE-ENSMA Ecole Nationale

Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2013. Français. ffNNT : 2013ESMA0028ff. fftel-00954471

[21] Law, C. ., & Sung, C. . (2000). Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets. *Progress in Energy and Combustion Science*, 26(4-6), 459–505. doi:10.1016/s0360-1285(00)00018-6

[22] Minamoto, Y., Swaminathan, N., Cant, R. S., & Leung, T. (2014). Reaction Zones and Their Structure in MILD Combustion. *Combustion Science and Technology*, 186(8), 1075–1096. doi:10.1080/00102202.2014.902814

[23] Egolfopoulos, F. N., Hansen, N., Ju, Y., Kohse-Höinghaus, K., Law, C. K., & Qi, F. (2014). Advances and challenges in laminar flame experiments and implications for combustion chemistry. *Progress in Energy and Combustion Science*, 43, 36–67.

[24] LIU, F., GUO, H., & SMALLWOOD, G. (2006). Evaluation of the laminar diffusion flamelet model in the calculation of an axisymmetric coflow laminar ethylene–air diffusion flame. *Combustion and Flame*, 144(3), 605–618. doi:10.1016/j.combustflame.2005.09.005

[25] Ravikrishna, R., & Sahu, A. (2017). Advances in understanding combustion phenomena using non-premixed and partially premixed counterflow flames: A review. *International Journal of Spray and Combustion Dynamics*, 10(1), 38–71. doi:10.1177/1756827717738168

[26] Peters, N. (1988). Laminar flamelet concepts in turbulent combustion. *Symposium (International) on Combustion*, 21(1), 1231–1250. doi:10.1016/s0082-0784(88)80355-2

[27] Ju, Y., Masuya, G., & Ronney, P. D. (1998). Effects of radiative emission and absorption on the propagation and extinction of premixed gas flames. *Symposium (International) on Combustion*, 27(2), 2619–2626. doi:10.1016/s0082-0784(98)80116-1

[28] Park, J.-W., Oh, C. B., & Kim, O. J. (2013). Radiation Effects on the Flame Structure and Extinction Limit of Counterflow Methane Partially Premixed Flames Diluted with Water Vapor in the Air Stream. *Combustion Science and Technology*, 185(9), 1306–1328. doi:10.1080/00102202.2013.796940

[29].Peters, N. (1984). Laminar diffusion flamelet models in non-premixed turbulent combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 10(3), 319–339. doi:10.1016/0360-1285(84)90114-x

- [30] Spalding, D. B. (1976). Mathematical models of turbulent flames; a review. *Combustion Science and Technology*, 13(1-6), 3-25.
- [31] VEYNANTE, D. (1999). Flamme de diffusion laminaire. *Techniques de l'ingénieur. Génie énergétique*, 2(BE8320), BE8320-1.
- [32] Kee, R.J., Miller, J.A., Evans, G.H., Dixon-Lewis, G. (1989). A computational model of the structure and extinction of strained, opposed flow, premixed methane-air flames. *Symposium (International) on Combustion*, 22(1): 1479-1494. [https://doi.org/10.1016/s0082-0784\(89\)80158-4](https://doi.org/10.1016/s0082-0784(89)80158-4)
- [33] <http://www.forum-pompier.com/dico/terme-503.html>
- [34] G.P. Smith, D.M. Golden, M. Frenklach, N.W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldenberg, C.T. Bowman, R.K. Hanson, S. Song, W.C. Gardiner, Jr, V.V. Lissianski and Z. Qin, GRI-Mech3.0, (1999), [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/).
- [35] Appel, J., Bockhorn, H., Frenklach, M. (2000). Kinetic modeling of soot formation with detailed chemistry and physics: laminar premixed flames of C2 hydrocarbons. *Combustion and Flame*, 121(1-2): 122-136. [https://doi.org/10.1016/s0010-2180\(99\)00135-2](https://doi.org/10.1016/s0010-2180(99)00135-2)
- [36] Marcucilli F., Gilot P., Stanmore B. R, Prado G., *Experimental and Theoretical Study of Diesel Soot Reactivity*, Proc. Comb. Inst., 1994, vol. 25, p. 1129-1136.
- [37] Anne-Flore Cosseron. Evaluation et traitement des polluants émis par un moteur thermique fonctionnant avec des biocarburants. *Alimentation et Nutrition*. Université de Haute Alsace - Mulhouse, 2012. Français. ffNNT : 2012MULH4077ff. fftel-00860233f
- [38] Barbusse, S., & Plassat, G. (2005). Les particules de combustion automobile et leurs dispositifs d'élimination. ADEME: Données et références.
- [39] Caroline Marchal. Modélisation de la formation et de l'oxydation des suies dans un moteur automobile. *Physique des Hautes Energies - Expérience [hep-ex]*. Université d'Orléans, 2008. Français. ffNNT : ff. fftel-00392316f
- [40] Cole, J. A., Bittner, J. D., Longwell, J. P., & Howard, J. B. (1984). Formation mechanisms of aromatic compounds in aliphatic flames. *Combustion and Flame*, 56(1), 51-70.
- [41] Frenklach, M., & Warnatz, J. (1987). Detailed modeling of PAH profiles in a sooting low-pressure acetylene flame. *Combustion science and technology*, 51(4-6), 265-283.

- [42] Marinov, N. M., Pitz, W. J., Westbrook, C. K., Castaldi, M. J., & Senkan, S. M. (1996). Modeling of aromatic and polycyclic aromatic hydrocarbon formation in premixed methane and ethane flames. *Combustion Science and Technology*, 116(1-6), 211-287.
- [43] MARINOV, N. M., CASTALDI, M. J., Melius, C. F., & Tsang, W. (1997). Aromatic and polycyclic aromatic hydrocarbon formation in a premixed propane flame. *Combustion science and technology*, 128(1-6), 295-342.
- [44] Lamprecht, A., Atakan, B., & Kohse-Höo, K. (2000). Fuel-rich propene and acetylene flames: a comparison of their flame chemistries. *Combustion and flame*, 122(4), 483-491.
- [45] Frenklach, M., & Wang, H. (1991, January). Detailed modeling of soot particle nucleation and growth. In *Symposium (International) on combustion* (Vol. 23, No. 1, pp. 1559-1566). Elsevier.
- [46] Liu, P., Lin, H., Yang, Y., Shao, C., Guan, B., & Huang, Z. (2015). Investigating the Role of CH<sub>2</sub> Radicals in the HACA Mechanism. *The Journal of Physical Chemistry A*, 119(13), 3261–3268. doi:10.1021/jp5124162
- [47] Bockhorn, H. (Ed.). (2013). *Soot formation in combustion: mechanisms and models* (Vol. 59). Springer Science & Business Media.
- [48] Richter, H., Benish, T. G., Mazyar, O. A., Green, W. H., & Howard, J. B. (2000). Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their radicals in a nearly sooting premixed benzene flame. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28(2), 2609-2618.
- [49] Lindstedt, P. R. (1994). Simplified Soot Nucleation and Surface Growth Steps for Non-Premixed Flames. *Soot Formation in Combustion*, 417–441. doi:10.1007/978-3-642-85167-4\_24
- [50] Caroline Marchal. Modélisation de la formation et de l'oxydation des suies dans un moteur automobile. *Physique des Hautes Energies - Expérience [hep-ex]*. Université d'Orléans, 2008. Français. ffNNT : ff. fftel-00392316f
- [51] Di Stasio, S., Konstandopoulos, A. G., & Kostoglou, M. (2002). Cluster–Cluster Aggregation Kinetics and Primary Particle Growth of Soot Nanoparticles in Flame by Light Scattering and Numerical Simulations. *Journal of Colloid and Interface Science*, 247(1), 33–46. doi:10.1006/jcis.2001.8095

- [52] Wang, Y., & Chung, S. H. (2019). Soot formation in laminar counterflow flames. *Progress in Energy and Combustion Science*, 74, 152–238. doi:10.1016/j.pecs.2019.05.003
- [53] Helena Ramirez Lancheros. Etude expérimentale et modélisation cinétique de l'oxydation, l'autoinflammation et la combustion de carburants Diesel et bio-Diesel. Autre. Université d'Orléans, 2012. Français. ffNNT : 2012ORLE2004ff. fftel-00717701f
- [54] Sparfel, L. (2018). Effets immunotoxiques des hydrocarbures aromatiques polycycliques. *Les cahiers de la Recherche: Santé, Environnement, Travail*, (12), 29-31.
- [55] Wang Y, Chung SH. Soot formation in laminar counterflow flames. *Prog Energy Combust Sci* ;74:152–238(2019).
- [56] Frenklach, M. (2002). Method of moments with interpolative closure. *Chemical Engineering Science*, 57(12), 2229-2239.
- [57] Zhou, M., Yan, F., Ma, L., Jiang, P., Wang, Y., Chung, S.H. (2022). Chemical speciation and soot measurements in laminar counterflow diffusion flames of ethylene and ammonia mixtures. *Fuel*, 308: 122003.  
<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2021.122003>
- [58] Appel, J., Bockhorn, H., Frenklach, M. (2000). Kinetic modeling of soot formation with detailed chemistry and physics: laminar premixed flames of C2 hydrocarbons. *Combustion and Flame*, 121(1-2): 122-136.  
[https://doi.org/10.1016/s0010-2180\(99\)00135-2](https://doi.org/10.1016/s0010-2180(99)00135-2)
- [59] C.T. Bowman, R.K. Hanson, D.F. Davidson, W.C. Gardiner, Jr, V. Lissanski, G.P. Smith, D.M. Golden, M. Frenklach and M. Goldenberg, *GRI-Mech2.11*, (1995), [http://www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/).
- [60] Fisher, E.M., Williams, B.A., Fleming, J.W. (1997). Determination of the strain in counterflow diffusion flames from flow conditions. *Proceedings of the Eastern States Section of the Combustion Institute*, pp. 191-194.