

Modélisation détaillée des transferts radiatifs et
couplage avec la cinétique chimique dans des systèmes
en combustion

A. de Guilhem de Lataillade

23 mars 2001

Table des matières

Nomenclature	5
Avant-propos	10
1 Introduction	11
1.1 Combustion et pollution	11
1.2 La suie au coeur du problème	14
1.3 Les besoins en rayonnement	15
1.4 Présentation du travail	16
2 Eléments de combustion	19
2.1 Flammes de diffusion	19
2.1.1 Généralités sur les flammes de diffusion laminaires	20
2.1.2 Etudes sur les flammes de diffusion laminaires à jets opposés	21
2.2 Schémas de cinétiques chimiques	23
2.2.1 Rappels en chimie	24
2.2.2 Schéma cinétique des suies	26
2.2.3 Schéma cinétique des gaz	35
2.3 Modèle macroscopique de combustion pour la flamme laminaire à jets opposés	36

2.3.1	Définition des variables	36
2.3.2	Propriétés thermo-chimiques et de transport : équations structurales	37
2.3.3	Equations de bilan	38
2.3.4	Conditions aux limites, aux interfaces & conditions initiales	39
2.3.5	Termes sources	40
2.4	Solution numérique au modèle de combustion et quelques exemples de résultats	41
3	Les transferts radiatifs en combustion	44
3.1	Rappels sur la physique du rayonnement	45
3.1.1	Introduction au vocabulaire et aux difficultés de modélisation du rayonnement	45
3.1.2	Transferts radiatifs en milieu semi-transparent	47
3.1.3	Spectre de raies des gaz de combustion	52
3.1.4	Propriétés spectrales des particules de suies	58
3.2	Formulations des Transferts radiatifs et méthodes numériques associées . . .	59
3.2.1	Formulation différentielle	61
3.2.2	Formulations intégrales	62
3.3	Eléments bibliographiques	71
4	Choix méthodologiques pour le développement d'un modèle radiatif de référence, sa réduction et son couplage avec la combustion	74
4.1	Formulation des transferts	75
4.1.1	Formulation intégrale	75
4.1.2	Formulation en PNE	75
4.2	Les Modèles de propriétés spectrales	78

4.2.1	Modèle pour les suies	78
4.2.2	Modèle pour les gaz formulé en k-distributions	79
4.2.3	Mélanges et hétérogénéités	83
4.3	Solution numérique par la méthode de Monte-Carlo	91
4.3.1	Choix de la méthode de Monte Carlo	91
4.3.2	Description de l'algorithme	94
4.4	Méthodologie de couplage avec la combustion	95
5	Densités de probabilité adaptées au problème de combustion	99
5.1	Aspects optico-géométriques : problème de l'épaisseur optique	100
5.1.1	Géométrie plane	101
5.1.2	Géométrie quelconque	111
5.2	Aspects spectraux	113
5.2.1	Pondération des bandes étroites	113
5.2.2	Densité de probabilité du coefficient d'absorption	116
5.3	Synthèse algorithmique	120
5.4	Illustration des qualités de convergence	123
6	Validations et applications du modèle radiatif à des géométries 1-D cylindriques ou planes - Résultats de couplage avec la combustion	130
6.1	Description de la géométrie du code de rayonnement et des générations de variables aléatoires associées.	131
6.2	Etude de validité du modèle radiatif formulé en PNE	134
6.3	Première application : calcul d'un flux radiatif pariétal pour des profils de température et de vapeur d'eau dans un moteur-fusée	140
6.4	La flamme de diffusion à jets opposés	144

6.4.1	Rappels sur le modèle de combustion	144
6.4.2	Construction d'une solution de référence sur les profils en concentra- tions et température de la flamme à $28,5s^{-1}$	146
6.4.3	Mise en oeuvre de la procédure de couplage et contrôle de la qualité des résultats couplés	151
6.4.4	Calculs couplés pour des flammes à bas taux d'étirement	152
Conclusion		156

Nomenclature

A	facteur pré-exponentiel de la loi d'Arrhénius
c	célérité de la lumière ($m .s^{-1}$) $= c_{vac}/n$
c_{vac}	célérité de la lumière dans le vide ($299792.5 \pm 0.4 m s^{-1}$)
d_p	diamètre d'une particule de suie (m)
D	dimension typique d'un agrégat de suie (m)
D_a	section efficace d'absorption d'un agrégat de suie
D_s	section efficace de diffusion d'un agrégat de suie
\mathbf{e}_n	vecteur unitaire normal à une surface
\mathbf{e}_Ω	vecteur unitaire portant la direction de propagation d'un rayon lumineux
E	Energie d'activation de la loi d'Arrhénius (erg unité c.g.s $10^7 erg = 1Joule$)
\mathbf{E}	champ électrique ($V m^{-1}$)
f_v	fraction volumique de suie
G	taux d'étirement ou facteur d'allongement ou taux de dissipation scalaire(s^{-1})
h	constante de Planck ($6.6260755 \pm 0.0000040 .10^{34} J s$)
\mathbf{H}	champ d'excitation magnétique ($T tesla$)
J	gradient de pression ($Pa.m^{-2}$)
k_B	constante de Boltzmann ($1,3806 \pm 0.000012 10^{-23} J K^{-1}$)
\mathcal{K}_{D_i}	constante de vitesse de la i^{eme} réaction dans le sens direct
\mathcal{K}_{I_i}	constante de vitesse de la i^{eme} réaction dans le sens indirect
l	abscisse curviligne sur un rayon lumineux (m)
$L(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)_\eta$	Luminance monochromatique au point P dans la direction \mathbf{e}_Ω ($W.m^{-2} str^{-1} Hz^{-1}$)
m	indice optique complexe
M	Masse molaire du mélange ($g.mol^{-1}$)

n	indice optique de réfraction (partie réelle de m)
N_{part}	nombre de particules de suie par unité de volume (m^{-3})
\mathcal{N}_a	nombre d'Avogadro ($6,0222 \cdot 10^{23}$ molécule/mol)
P	Pression thermodynamique totale (Pa) (atm pour les données spectroscopiques)
R	constante des gaz parfaits ($8,3144 J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$)
$q_{i,D}$	vitesse de réaction de la i^{eme} réaction dans le sens direct ($mol.cm^{-3}.s^{-1}$)
$q_{i,I}$	vitesse de réaction de la i^{eme} réaction dans le sens indirect ($mol.cm^{-3}.s^{-1}$)
\mathbf{q}_R	vecteur flux radiatif ($W.m^{-2}$)
\mathbf{r}_P	vecteur position d'un point P
S	une surface, en général une paroi noire
t	temps (s)
T	température du mélange (K)
v	vitesse hydrodynamique du mélange ($m.s^{-1}$)
V	un volume contenant des gaz et de la suie
V_k	vitesse de diffusion de la k^{eme} espèce ($m.s^{-1}$)
w_k	vitesse de production massique de la k^{eme} espèce ($kg.cm^{-3}.s^{-1}$)
W_k	vitesse de production molaire de la k^{eme} espèce ($mol.cm^{-3}.s^{-1}$)
X_k	fraction molaire de la k^{eme} espèce
Y_k	fraction massique de la k^{eme} espèce

Lettres grecques

α	terme correcteur pour tenir compte de l'hypothèse de Curtis-Godson dans les formulation en en k-distributions
β	exposant de la température dans la loi d'Arrhénius
$\Delta\eta$	intervalle spectral (bande étroite) centré sur le nombre d'onde η (m^{-1})
η	nombre d'onde du rayonnement (m^{-1})
κ_η	coefficient d'absorption monochromatique du rayonnement (m^2/m^3)
λ	longueur d'onde du rayonnement (m)
ν	fréquence du rayonnement (Hz) ou coefficient stoechiométrique d'une réaction chimique

ν_{cin}	viscosité cinématique du mélange ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)
σ	constante de Stefan-Boltzmann ($5.67 \cdot 10^{-8} W m^{-2} K^{-4}$)
φ	flux ou puissance d'énergie radiative (W)
$\varphi_{A \rightarrow B}$	flux ou puissance d'énergie radiative de A vers B (W)
$\varphi_{A \leftrightarrow B}$	flux ou puissance d'énergie radiative net entre A et B (W)
ϕ	richesse du mélange (combustion) ou paramètre de forme d'une bande étroite (rayonnement)
Φ	fonction de phase utilisée pour la diffusion du rayonnement
ρ	densité volumique du mélange ($kg.m^{-3}$)
$\tau_{\eta}(L)$	transmittivité monochromatique d'une colonne de longueur L
θ	angle entre la direction du rayon et la ligne de visée de l'observateur (rad)

Indices

b	corps noir
CG	Curtis-Godson
D	sens direct d'une réaction chimique
I	sens indirect d'une réaction chimique
k	numéro d'une espèce chimique
M	Malkmus ($\bar{\tau}_M$ désigne la transmittivité moyenne de Malkmus et f_M la fonction de distribution de Domoto)
vac	vide

Exposants

air	désigne la zone d'alimentation pauvre en combustible
co	relatif au monoxyde de carbone
co_2	relatif au dioxyde de carbone
$fuel$	désigne la zone d'alimentation riche en combustible (méthane)
h_2o	relatif à la vapeur d'eau
s	relatif aux suies
g	relatif aux gaz

Abréviations

<i>CEIL</i>	désigne le plus petit entier supérieur ou égal à un nombre
<i>Ei</i>	est mis pour une fonction intégrale exponentielle
<i>ETR</i>	Equation de Transfert radiatif
<i>HAP</i>	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques
<i>MC</i>	méthode de Monte-Carlo
<i>OTL</i>	modèle radiatif avec l'approximation optiquement mince
<i>PNE</i>	Puissances Nettes Echangées
<i>sans rad</i>	calcul sans modèle radiatif
<i>SNB</i>	modèle de propriétés radiatives statistique à bandes étroites
<i>TLM</i>	modèle radiatif en série de Taylor construit à partir d'un calcul de référence par la méthode de Monte-Carlo

Avertissements

- Les vecteurs sont notés en caractère gras (il n'est fait aucune différence entre les vrais et les pseudo-vecteurs)
- les dérivées par rapport au temps sont notées avec un point \dot{v}
- Les dérivées partielles sont notées ∂_x pour $\frac{\partial}{\partial x}$
- une variable entre crochets [] désigne une concentration molaire $mol.m^{-3}$
- Les moyennes d'une variable v sur un domaine D sont notées $\langle v \rangle_D$ ou \bar{v}^D . En l'absence de D , les moyennes se font implicitement sur une bande spectrale étroite
- Dans la notation d'une intégrale d'une fonction f intégrable $\int_{x \in D} dx \quad f(x)$ on désignera par :
 - dx l'élément de mesure
 - $f(x)$ l'intégrant

Avant-propos

L'étude que contient ce mémoire n'aurait pas été possible, si une équipe dispersée sur trois laboratoires¹ travaillant dans le domaine des transferts radiatifs, ne s'était rapprochée d'activités liées à la chimie et à la combustion. Ce document porte les marques de l'interdisciplinarité naissante de cette équipe et me donne l'occasion ici de mettre en garde le lecteur sur les travers d'une telle démarche.

Tout d'abord, se situer à la croisée des chemins peut favoriser l'incompréhension mutuelle des spécialistes des différents domaines. C'est pourquoi je me suis efforcé de rappeler dans ce document certaines notions qui peuvent paraître élémentaires pour certains, mais qui néanmoins sont indispensables pour éclairer mon travail. En revanche, la vaste étendue des domaines abordés m'a obligé à passer sous silence certains aspects certainement fondamentaux, mais qui n'apportaient pas plus de clarté à ce mémoire.

L'esprit de ce travail, a été d'analyser les modèles de combustion et leurs prédictions, afin d'essayer d'y introduire des modèles de transferts radiatifs aussi précis que possible avec l'idée qu'améliorer les modèles est un pas vers une meilleure compréhension.

¹Le Laboratoire de Météorologie Dynamique à Jussieu PARIS, Le Laboratoire d'Etude des Systèmes et de l'Environnement Thermique de l'Homme - Université Paul Sabatier TOULOUSE, et Le centre Energétique-Environnement - Ecole des Mines ALBI

Chapitre 1

Introduction

Sur le chemin qui mène au développement de notre société, se pose le problème de la pollution liée notamment à son industrie. Dès le début, la motivation de ce travail s'est inscrite dans la perspective d'apporter des éléments nouveaux à la compréhension des émissions polluantes observées dans les systèmes de combustion.

1.1 Combustion et pollution

La combustion est un phénomène complexe car il met en jeu des couplages forts entre transferts de matière et de chaleur. Les problèmes rencontrés y sont nombreux : turbulence, formation de polluants, rayonnement, stabilité de la flamme, etc... La formation des espèces chimiques polluantes est étroitement liée aux températures qui pilotent les réactions chimiques.

Pour mieux saisir l'enjeu qui se cache derrière l'étude de la pollution, revenons sur quelques raisons qui ont conduit notre société à s'inquiéter du rejet d'espèces chimiques mineures (monoxide de carbone CO, oxydes d'azote NO_x , suies).

Santé et Social Près de 2/3 des NO_x présents dans l'atmosphère sont attribués à l'activité humaine. Dans le monde, les émissions d'origine anthropique sont comprises entre 20 et 50 millions de tonnes par an [Bicocchi (1998)]. La contribution de la pollution au-

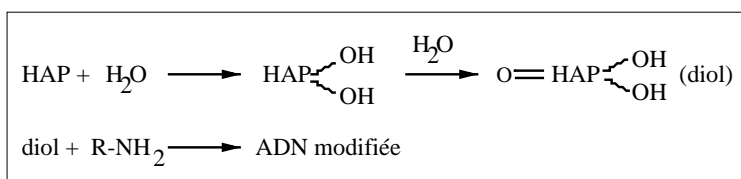


FIG. 1.1 – Les étapes menant à la mutation de l'ADN en présence de HAP [com (2000)]

tomobile semble être la plus importante dans la pollution globale par NO_x (68% dans [com (2000)]). Des études concernant leurs effets nuisibles sur la santé sont régulièrement publiées. [Rabl... (1998)] indique que ce sont des irritants des voies pulmonaires et qu'ils jouent un rôle important dans la formation des smogs de par leur participation aux réactions photochimiques. Il existe beaucoup d'autre polluants. En particulier, on peut citer les suies et les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) qui ont une nature chimique proche de celle des suies. Ce sont des assemblages d'atomes de carbone et d'hydrogène dans lesquels on trouve un grand nombre de noyaux aromatiques ou radicaux phényle (C_6H_5). Sous le terme HAP on désigne donc une famille qui regroupe plusieurs milliers de molécules possibles. Les HAP ont des origines très variées (**Tab.1.1**). Les mesures présentées dans le **Tab.1.1** ont été effectuées sur des échantillons constitués de 7 espèces de HAP, 16 espèces de HAP ou par extraction de la matière organique (EOM). Les principales sources de production des HAP proviennent de l'utilisation de combustibles fossiles, que ce soit sur des installations industrielles ou domestiques. On remarquera qu'un inventaire complet des émissions de HAP n'est pas possible du fait de la diversité de leurs origines. Suies et HAP sont mutagènes et peuvent provoquer des cancers. On avance le mécanisme suivant **Fig. 1.1** : en présence d'eau, les HAP se transforment en diols. Ces derniers peuvent s'associer aux acides aminés de l'Acide DésoxyriboNucléique (ADN) pour donner un ADN modifié ou mutant.

Une fois formés les polluants, leur extraction et leur destruction ne manquent pas de poser des difficultés tant sur le plan technique que financier. Par exemple, l'élimination des suies par des dépoussiéreurs est loin d'être une solution car ces derniers sont des éléments que l'on soupçonne d'être le lieu de formation des dioxines, également nocives pour la santé. Le recours à des voies d'élimination catalytique semble alors une alternative intéressante [Neeft... (1996)] mais le contrôle des conditions favorables aux réactions de catalyse reste un point délicat. Globalement, les coûts de santé provoqués par la pollution et les investissements

financiers engagés pour le retraitement des polluants et des déchets, justifient les recherches importantes mises en oeuvre actuellement pour une “industrie propre en amont”.

Economie et Droit Avec les nouvelles normes européennes retenues à la fin du XX^{ieme} siècle, la réduction des émissions de polluants devient plus contraignante. La nécessité d’outils capables de faire des prédictions fines sur les températures et les polluants dans des systèmes industriels, et donc dans des géométries complexes, trouve une justification supplémentaire. A

Type de source	7 HAP	16 HAP	EOM
fabrication de coke	51	675	-
combustion de charbon secteur tertiaire	36	173	-
combustion de charbon secteur industriel	3	165	41039
combustion de bois secteur industriel	3	152	97848
combustion de pneus	307	1720	-
raffinage/cracking catalytique	16	313	-
distribution d’essence	-	727	-
production d’aluminium	141	662	3876
fabrication de papier	4	832	-
combustion de bois secteur résidentiel	572	8855	235881
combustion de charbon secteur résidentiel	32	103	1946
combustion de gaz naturel secteur résidentiel	-	0	928
véhicules non routiers	-	-	25116
véhicules routiers	19	47	56157
feux de forêt et de défrichage	964	2540	-
traitement du bois	-	457	-
Autres sources	16	561	18892
TOTAL	2164	17982	481683

TAB. 1.1 – Principales sources de HAP aux Etats-Unis en tonnes/an [clean air act (1997)]. Ces analyses sont effectuées sur des échantillons constituée de 7 ou 16 espèces de HAP ou bien par extraction de matière organique (EOM).

cela, vient s'ajouter en France la loi-cadre du 15 juillet 1975 (modifiée en 1992, 1993 et 1999) qui prévoit la limitation des décharges aux déchets ultimes mais aussi, l'élimination des rejets nocifs. Bon nombre d'installations de retraitement des déchets verront alors leur activité s'accroître, et avec elle les rejets polluants. Au niveau international les seuils d'émissions polluantes peuvent devenir un enjeu économique. Par exemple, si les avionneurs américains arrivaient à abaisser leur niveau d'émissions polluantes, les avions européens fabriqués par Airbus, devenus "pollueurs", se vendraient moins bien et pourraient se voir interdire l'accès aux Etats-Unis. Il y a donc une concurrence permanente pour limiter les rejets polluants dans les procédés à hautes températures.

1.2 La suie au coeur du problème

Il existe une industrie où l'on fabrique volontairement les suies. On peut citer les chaudières pour lesquelles on souhaite augmenter les transferts de chaleur aux parois, mais il existe aussi l'industrie de l'impression : toner pour photocopieurs, etc. Signe de prospérité et de richesse au sommet des cheminées d'usine au début du $XX^{ième}$ siècle, les suies sont jugées de nos jours dangereuses pour la santé et néfastes pour les installations. Leur présence rend une flamme jaune et lumineuse. Quand une partie des suies s'échappe de la zone chaude avant d'avoir été oxydée, la flamme se met à fumer.

Leur présence modifie considérablement les pertes d'énergie par rayonnement provoquées par les niveaux élevés de température : 20 à 50% dans les flammes de méthane (CH_4) [Bockhorn (1994), Hall (1994)]. Les vitesses de production chimiques, très sensibles aux températures, peuvent être alors changées et les équilibres chimiques sont également déplacés. La production de monoxyde d'azote (NO) peut alors être très sensiblement affectée par la présence des suies (50% en fraction massique selon [Hall (1994), Frank... (2000)]). Les conséquences en retour sur la formation de suie sont tout aussi importantes et de nombreux auteurs relèvent le couplage fort entre rayonnement et cinétique de suies¹ qui devient un élément majeur lors de la formation des polluants (notamment des NO_x) dans les systèmes industriels [Carvalho... (1991), Hall (1994), Warnatz... (1996)][Bressloff... (1997), Bressloff (1999),

¹Il s'agit des auteurs suivants : [Hall (1994), Sivathanu... (1994), Adams... (1995), Kaplan... (1996), Sivathanu... (1997), Hall... (1997), Desjardin... (1999)]

Frank... (2000)]. Par exemple dans un moteur diesel, lorsque la production de suie augmente, la quantité de *NO* diminue [Abraham... (1997)] et inversement.

Les schémas de cinétique de suie sont actuellement en plein développement et le besoin, mal satisfait, de pouvoir s'appuyer sur un calcul de transfert radiatif de qualité couplé à la chimie, est souvent mentionné de nos jours, par exemple pour les flammes de CH_4 [Hall... (1997), Frank... (2000)]. Nous reviendrons sur les difficultés de modélisation des cinétiques de formation des suies. Attardons nous sur les besoins de modélisation en transferts radiatifs.

1.3 Les besoins en rayonnement

Au coeur de ces systèmes complexes, c'est sur le rayonnement que nous souhaitons porter notre effort. Le transfert radiatif est un des modes de transfert de chaleur dominants dans les systèmes industriels à hautes températures et grandes échelles [Carvalho... (1998)]. Son influence est incontournable dans les domaines de la motorisation, en particulier pour les moteurs diesel [Rutland... (1994), Abraham... (1997)] mais aussi dans les fours industriels, les chaudières [Coelho... (1995), Coelho... (1996)], les fours verriers et les incinérateurs [Nasserzadeh... (1991), Olsommer... (1997a), Shin... (2000)]. A titre d'illustration :

- Dans une étude de moteur diesel [Abraham... (1997)] estime les pertes par rayonnement entre 40 et 60% des pertes totales de chaleur pour des températures pouvant aller de 1000 à 3000 K.
- Dans le cas de fours d'incinération d'ordures ménagères, on atteint des températures de parois de 500 à 1000 K, pour lesquelles le rayonnement représente 95% du transfert thermique total [Olsommer... (1997a)].
- A des échelles plus petites, on retrouve de tels effets : la prise en compte du rayonnement peut représenter 20% dans les flammes d'hydrogène [Dagusé (1996)] et jusqu'à 60% dans une flamme de diffusion turbulente d'acétylène [Gore... (1988)].

Si les flux globaux aux parois sont souvent assez bien estimés à partir des modèles les plus courants, en revanche, les termes sources radiatifs locaux représentent une difficulté plus grande. En effet, si pour les parois il suffit d'évaluer le flux radiatif, lorsqu'il s'agit de cal-

culer un terme source volumique il faut en prendre la divergence, avec tous les problèmes de perte de précision numérique associés. Il s'agit pourtant là d'un enjeu important si l'on croit aux besoins croissants d'études énergétiques pour une bonne compréhension des mécanismes de formation des polluants au coeur des flammes dans les systèmes industriels [Desroches Ducarne... (1998), Mukadi... (2000)]. Tenir compte à la fois du rayonnement des suies et des gaz de combustion est de ce point de vue essentiel. A ce sujet, on peut voir reproduit **Fig. 1.2** un résultat de Hall pour une petite flamme à jets opposés montrant différents niveaux de formation de NO_x selon que dans le modèle il a été tenu compte du rayonnement des gaz seuls ou des gaz mêlés aux suies. On peut observer que la formation des NO_x varie

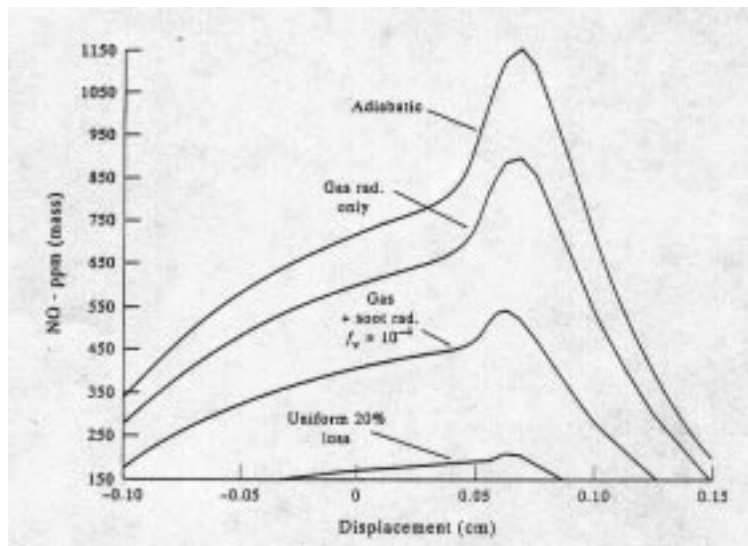


FIG. 1.2 – Niveaux de formation de NO_x dans une flamme plane extrait de [Hall (1994)]

au minimum de 50% entre un modèle avec et sans rayonnement lorsqu'il y a une quantité de suie importante. L'effet de la contribution radiative des gaz et des suies sur le taux de formation de NO_x est comparable dans cet exemple.

1.4 Présentation du travail

Dans ce paysage, les problèmes scientifiques émergeant sont nombreux. Il y a cependant un verrou scientifique sur lequel nous souhaitons porter notre attention. Les études de cinétiques chimiques associées aux efforts de minimisation des émissions polluantes exigent une

connaissance très précise des champs de température et relancent les recherches autour de la thermique fine des systèmes de combustion. Pour les systèmes de grande taille (incinérateurs, chaudières industrielles,...) la thermique est dominée par les transferts radiatifs dans les mélanges gaz/particules et les techniques de modélisation existantes, développées pour des besoins de dimensionnement énergétique, ne satisfont pas aux exigences des modèles de cinétiques. L'utilisation conjointe de modèles numériques très complets en chimie, en mécanique des fluides et en rayonnement est actuellement hors de portée pour des configurations industrielles. Ces difficultés numériques sont à l'origine de nos travaux.

Notre but est de développer des simulations rapides et précises du rayonnement des flammes qui puissent être simplement raccordées aux autres éléments d'un modèle de combustion détaillée. Au-delà de ces difficultés numériques, c'est la manière de modéliser les transferts radiatifs que nous souhaitons rediscuter. La principale originalité de notre projet est de proposer un renouvellement de la démarche usuelle de réduction des modèles en transferts radiatifs. La démarche la plus courante consiste à dégrader les modèles de propriétés radiatives, ou bien à traiter la réabsorption du rayonnement de manière grossière. Nous pensons au contraire qu'une grande précision de représentation des propriétés spectrales des mélanges gaz et suie, ainsi que de toute la complexité des questions de transfert associées, est incontournable dans le contexte actuel de minimisation des émissions polluantes. De ce point de vue, les techniques de simulation stochastique des transferts radiatifs autorisent un renouveau de la démarche en ce sens que, grâce aux évolutions algorithmiques et matérielles, il est possible d'envisager la production de solutions de référence en géométrie réelle, à partir desquelles on peut construire des modèles simplifiés de grande qualité. L'atout premier des techniques statistiques d'estimation d'intégrales multiples est certainement que les performances numériques ne se dégradent pas rapidement en relation avec la dimension du problème. Plus précisément, la dimension d'intégration la plus délicate, ici la dimension spectrale, contrôle souvent la rapidité de convergence, et les autres dimensions d'intégration peuvent n'avoir que peu d'influence sur les temps de calcul. Cela signifie pour nous qu'en l'absence de diffusion et de réflexions multiples, les intégrations spatiales et angulaires peuvent ne représenter qu'un faible coût numérique supplémentaire dès lors qu'une intégration spectrale fine est requise.

Les limites d'une telle démarche sont à explorer. C'est le sens premier de ce travail qui se

donne avant tout pour objectif de tester ce principe méthodologique sur des configurations simples, bien maîtrisées, en préalable à toute extension vers des systèmes de complexité croissante. Nous étudierons une flamme de diffusion laminaire monodimensionnelle, mais tout dans la démarche sera mis en oeuvre en préservant l'extension vers des géométries réelles, sans compromis sur les propriétés radiatives. Ces travaux d'extension ont d'ailleurs été amorcés, et au moment d'écrire ces lignes, des versions multidimensionnelles et avec diffusion sont en cours de validation.

A l'issue de ce chapitre introductif, le second chapitre contient des rappels en combustion suivi des détails du modèle de combustion pour la flamme à jets opposés que nous utiliserons à la fin de ce travail. Le chapitre suivant abordera les questions de modélisation du rayonnement dans le contexte de la combustion et à cette occasion un rappel important en rayonnement sera effectué.

Les chapitres suivants 2 et 3 sont donc très généraux. Ils permettent de rappeler des éléments de combustion et de rayonnement, sans rentrer dans les détails d'un travail qui n'était pas le nôtre. La suite du document se concentre sur nos travaux dans le domaine de la modélisation des transferts radiatifs couplés à la physico-chimie de la combustion. Le chapitre 4 donne les raisons, les choix sous-jacents à notre modélisation alors que le chapitre suivant présente des développements formels permettant d'aboutir à l'expression des densités de probabilités adaptées que nous suggérons pour réduire la variance d'une estimation statistique des termes source radiatifs en combustion. Le sixième chapitre a pour but d'illustrer cette démarche à partir de résultats en géométrie monodimensionnelle.

Chapitre 2

Eléments de combustion

Ce chapitre présente la majeure partie des aspects en combustion dont nous aurons besoin. Au premier plan, il y aura des généralités sur la combustion puis, sur leurs bases, nous énoncerons le choix de la flamme-test sur laquelle nous développerons notre démarche de modélisation couplée du transfert radiatif avec la combustion. A cette occasion, nous entrerons dans la description du modèle de combustion que nous illustrerons par quelques résultats typiques.

2.1 Flammes de diffusion

La combustion qui retient notre attention est une réaction chimique fortement exothermique qui se produit dans un écoulement gazeux non-prémélangé. En effet, les impératifs de sécurité dans les systèmes industriels conduisent à séparer combustibles et comburants pour ne conserver que la classe des flammes dites non-prémélangées¹. Nous n'aborderons pas en détail l'aspect turbulent de l'écoulement car notre travail ne concerne pas l'aspect dynamique de ces phénomènes ou d'éventuels couplages avec celui-ci.

¹que nous appellerons souvent “de diffusion” par abus de langage.

2.1.1 Généralités sur les flammes de diffusion laminaires

Les flammes de diffusion laminaires ont fait l'objet de nombreuses études depuis plusieurs décennies, que ce soit sous la forme d'études analytiques, numériques ou expérimentales. Elles représentent une configuration idéale pour valider notre compréhension de la combustion. On doit à [Burke... (1928)] l'un des premiers calculs théoriques avec une flamme à jet plan.

Dans les flammes de diffusion laminaires, on distingue les flammes à co-courant en général axisymétriques [Sivathanu... (1997)], et les flammes à contre-courant pour lesquelles on trouve des modélisations monodimensionnelles. On distingue pour ces dernières (**Fig. 2.1**) un front de flamme courbe (brûleur de Tsuji : Tsuji et Yamaoka 1971) ou plan (brûleurs à jets opposés). C'est en négligeant la diffusion dans la direction orthogonale aux lignes de

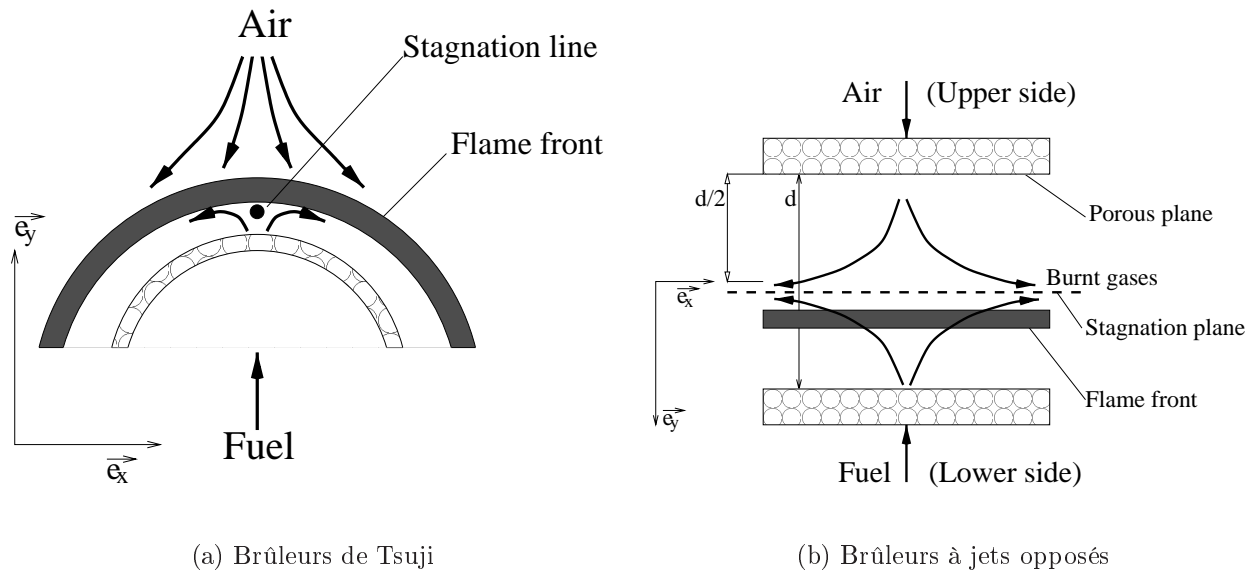


FIG. 2.1 – Schémas de flammes non-prémélangées à contre-courant

flux (Approximation de Prandtl ~1904) que le problème se réduit à une dimension (flamme auto-similaire). Ces flammes de diffusion laminaires à jets opposés offrent encore de nos jours un terrain de recherche riche. D'une part, elles permettent de s'affranchir des problèmes géométriques pour mettre au premier plan l'étude physique de la combustion (validation de cinétiques chimiques, comparaison aux résultats expérimentaux). D'autre part, elles sont l'élément de base d'une modélisation de la combustion turbulente dans certaines théories fondées sur le concept de flammelettes [Peters (1986)].

Les forces opposées des deux jets qui se rencontrent, sont responsables de l'étirement de la flamme. Cette dernière se stabilise non loin du plan de stagnation pour lequel les vitesses dans la direction parallèle à l'axe de symétrie \mathbf{e}_y sont nulles. Le gradient de vitesses le long de la direction \mathbf{e}_y donne le taux d'étirement local de la flamme. On utilise également le taux d'étirement global, calculé sur le front de flamme, et qui a beaucoup d'importance puisque deux flammes de diffusion avec ce même taux d'étirement ont une structure dynamique analogue. L'inverse du taux d'étirement s'appelle le temps de séjour. Il mesure le temps pendant lequel les réactifs restent en contact.

Aux forts et faibles étirements, la flamme est très sensible aux pertes radiatives. Si l'étirement est très grand, la flamme peut-être soufflée et s'éteindre. Dans ces conditions le rayonnement peut modifier significativement la limite d'extinction [Chao... (1993)]. A l'opposé, pour un faible étirement, la flamme s'épaissit, et les pertes d'énergie par transfert radiatif augmentent par rapport aux pertes par conduction et convection. On parle alors ([T'ien (1986)] ou [Chao... (1993)]) d'une extinction radiative. Pour une flamme à jets opposés de méthane à taux d'étirement faible, le rayonnement a une influence marquée sur la température de flamme [Chan... (1995), Garcia... (1996)]. Ces derniers auteurs, bien que la flamme soit de dimension très petite, trouvent un domaine de fonctionnement où nous avons la possibilité de mettre en évidence 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 où les taux d'étirements sont très faibles, la flamme modélisée avec rayonnement et soumise à l'action d'une baisse des vitesses d'injection des réactifs, s'éteint plus difficilement qu'une autre qui serait modélisée sans bilan radiatif. Les arguments sont que, sous la contrainte radiative, l'abaissement de la température influe sur les processus convecto-diffusifs, favorisant la rencontre des espèces chimiques et augmentant le taux d'étirement. De sorte que, pour les mêmes vitesses de jets une flamme modélisée avec rayonnement a un taux d'étirement plus fort qu'une flamme modélisée sans.

2.1.2 Etudes sur les flammes de diffusion laminaires à jets opposés

Les études asymptotiques des flammes de diffusion à contre-courant débutent dans les années cinquante avec [Zeldovitch (1949)], [Spalding (1957)] puis [Liñan (1974)]. Elles sont suivies dans les années soixante dix par des calculs numériques de structures de flammes.

On peut trouver de nombreuses références sur ces flammes dans l'article de synthèse de [Tsuji (1982)] et dans la thèse de [Dagusé (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 numériques² de [Bonne (1971)], [Dixon Lewis... (1984), Dixon Lewis... (1988)], [Darabiha... (1988), Darabiha (1992)], [Darabiha... (1992)], [Behrendt... (1991), Liu... (1991)], [Smooke... (1986)], [Vranos... (1993)], [Wu... (1972)], [Yamaoka... (1986)], [Dagusé... (1996)] et [Blevins... (1998)].

Parmi ces travaux, on distinguent 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 sujets suivants : les schémas de réactions chimiques, les transferts radiatifs, ou bien les instabilités hydrodynamiques. A propos des transferts radiatifs, pendant longtemps, ils ont été considérés comme un mode de transfert mineur par rapport aux autres échanges de chaleur [Bonne (1971)]. Ils ont donc d'abord été traité 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 fins donc sans tenir compte de la réabsorption du rayonnement. Il est désormais établi que pour des configurations optiquement épaisses (où l'absorption du rayonnement est très importante) il est nécessaire d'avoir des modèles à plus grande dynamique spectrale [Dagusé (1996)], 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 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.

Dans les faits, les études de flammes de diffusion non-adiabatiques (spécifiques aux transferts radiatifs) commencent dès les années soixante-dix [Negrelli... (1977), T'ien (1986), Liu... (1991)]. Plus récemment, ces travaux concernent l'interaction rayonnement/formation des suies [Sivathanu... (1997), Smooke... (1999), Beltrame... (2001)]. Pour des études ra-

²Nous compléterons cette liste non exhaustive par des travaux numériques spécifiques aux aspects radiatifs.

diatives concernant spécifiquement les flammes à jets opposés on peut se référer principalement à [Law... (1992)] [Egolfopoulos (1994)] [Vranos... (1993), Hall (1993), Hall (1994), Garcia... (1996), Chan... (1995)], [Dagusé... (1993), Dagusé (1996), Dagusé... (1996), Zhang (1999)], avec en particulier le travail de [Hall (1994)] qui concerne le fort couplage entre le rayonnement et la formation des suies pour ces flammes à jets opposés. En termes d'émission polluante, on peut retenir principalement que les pertes radiatives conduisent à une diminution de la température de flamme [Behrendt... (1991), Liu... (1991), Hall (1993), Dagusé (1996)] qui se traduit par une baisse de la production des espèces mineures (NO_x , etc...)[Vranos... (1993), Hall (1994), Chan... (1995), Smooke... (1996), Beltrame... (2001)]. Peu de travaux abordent la présence des suies et la limite d'extinction qu'elles pourraient provoquer, par pertes radiatives, en régime riche pour les flammes à jets opposés.

Nous verrons que pour cette géométrie simple les difficultés spatiales et spectrales que représente le rayonnement, sont difficiles à introduire dans les modèles. Nous aborderons cet aspect fondamental du couplage du rayonnement avec la combustion lorsque nous discuterons des modèles radiatifs. Pour commencer à coupler un modèle radiatif détaillé à un modèle de combustion avec chimie complexe il vaut mieux s'affranchir de difficultés géométriques. C'est certainement sur la base d'une géométrie simple qu'on peut commencer à éprouver une méthodologie de couplage nouvelle entre rayonnement et cinétique chimique. Le choix du modèle de combustion se fait donc à la lumière des éléments que nous venons de présenter. Dans l'ensemble des flammes de diffusion, c'est la flamme plane de diffusion laminaire à jets opposés que nous retenons. C'est une flamme de référence en combustion. Dans la théorie des flammelettes, les flammes turbulentes sont représentées par une collection de flammes 1-D à jets opposés qui sont convectées et déformées par la turbulence mais qui restent identifiables.

2.2 Schémas de cinétiques chimiques

Les processus chimiques sont au premier plan de la combustion. Ils ne sont en général pas infiniment rapides devant les transferts de masse et de chaleur. Les échelles de temps sont importantes pour déterminer l'état du système : on parle de cinétique chimique. Un prérequis indispensable à notre objectif de coupler un modèle radiatif détaillé avec la combustion pour un mélange gaz et suies, est de disposer d'un modèle de cinétique de formation des suies,

même grossier. Nous nous intéresserons donc en premier lieu à la cinétique de formation des suies, puis nous parlerons des gaz.

2.2.1 Rappels en chimie

Avant d'aborder les schémas réactionnels, faisons quelques rappels sur les aspects quantitatifs de la chimie de la combustion. Commençons par rappeler la notion de richesse. Il s'agit d'une grandeur ϕ qui mesure l'excès ou le défaut de combustible par rapport au mélange stoechiométrique :

$$\phi = \frac{\left(\frac{\text{quantité de combustible}}{\text{quantité d'oxygène}} \right)_{\text{mélange étudié}}}{\left(\frac{\text{quantité de combustible}}{\text{quantité d'oxygène}} \right)_{\text{mélange stoechiométrique}}}$$

Pour un mélange riche ($\phi \geq 1$), il y a un excès de combustible par rapport à la stoechiométrie. On appelle dilution l'ajout de molécules neutres³ dans le combustible ou dans l'oxygène. Elle n'agit pas sur la richesse.

En chimie, il existe deux sortes de schémas réactionnels : les schémas à chimie simple et les schémas détaillés qui se composent d'un grand nombre de réactions élémentaires. L'introduction de schémas cinétiques détaillés dans un modèle de combustion peut très rapidement constituer un obstacle d'un point de vue numérique. La réduction des modèles de cinétiques, notamment pour les hydrocarbures lourds, est donc un aspect important de la cinétique chimique. Ce sont des analyses de sensibilités des réactions qui permettent de simplifier les modèles de cinétique. Il existe différentes techniques, dont les méthodes ILDM [Maas (1998), Blasenbrey... (2000)]. Celles-ci permettent de prendre en compte la chimie détaillée tout en la décrivant dans un espace de dimension réduite. On distingue également les cinétiques de réaction lentes et infiniment rapides. Les équilibres chimiques auxquels on aboutit par ces dernières sont prédits par la thermodynamique classique des états d'équilibre et ne nécessitent donc pas de schémas réactionnels complexes. Au contraire, pour la production de suie nous nous plaçons dans le cas où la connaissance d'intermédiaires réactionnels est essentielle. Nous devons donc introduire quelques notions de cinétique chimique. Il s'agit

³Il s'agit en général d'azote N_2 . Bien que cette espèce soit consommée par la réaction de formation du NO, elle peut être considérée comme non réactive (lors d'un calcul de dilution) car la quantité consommée est très faible par rapport à la quantité totale d'azote

de caractériser la chimie d'un mélange constitué de K espèces impliquées dans I réactions. On distingue les réactifs (présents à l'instant initial) et les produits. Le cas général d'une réaction élémentaire réversible, se formalise ainsi :

$$\sum_{k=1}^K \nu'_{ki} \mathcal{L}_k \rightleftharpoons \sum_{k=1}^K \nu''_{ki} \mathcal{L}_k \quad (2.1)$$

où \mathcal{L}_k symbolise la k^{eme} espèce. ν'_{ki} et ν''_{ki} sont respectivement les coefficients stoechiométriques dans le sens direct et inverse de la i^{eme} réaction mettant en jeu les K espèces.

La vitesse de production massique de la k^{eme} espèce s'écrit :

$$w_k = W_k M_k \quad (2.2)$$

avec M_k la masse molaire de l'espèce \mathcal{L}_k et W_k sa vitesse de production molaire.

$$W_k = \sum_{i=1}^I \left(\nu''_{ki} \dot{q}_{i,I} - \nu'_{ki} \dot{q}_{i,D} \right) \quad (2.3)$$

où $\dot{q}_{i,D}$ et $\dot{q}_{i,I}$ sont respectivement les vitesses de réaction⁴ dans les sens direct et inverse de la i^{eme} réaction, exprimée en phase gazeuse, par :

$$\dot{q}_{i,D} = \mathcal{K}_{D_i} \prod_{k=1}^K [\mathcal{L}_k]^{\nu'_{ki}} \quad \text{et} \quad \dot{q}_{i,I} = \mathcal{K}_{I_i} \prod_{k=1}^K [\mathcal{L}_k]^{\nu''_{ki}} \quad (2.4)$$

Lorsque la réaction n'est pas élémentaire, les exposants des concentrations sont différents des coefficients stoechiométriques : on les appelle ordre de la réaction pour l'espèce \mathcal{L}_k . Cela n'est pas supposé se produire pour un schéma détaillé de cinétique. Il faut alors pouvoir exprimer la concentration molaire $[\mathcal{L}_k]$, par exemple en fonction de la fraction molaire X_k :

$$[\mathcal{L}_k] = X_k \frac{P}{RT}$$

et la constante de vitesse \mathcal{K}_{D_i} de la i^{eme} réaction dans le sens direct, par la loi d'Arrhénus :

$$\mathcal{K}_{D_i} = A_i T^{\beta_i} \exp\left(\frac{-E_i}{RT}\right)$$

On appelle habituellement A_i le facteur pré-exponentiel, β_i l'exposant de la température, et E_i l'énergie d'activation, de la réaction directe. La constante de vitesse du sens indirect

⁴On peut noter $\dot{q}_i = \dot{q}_{i,D} - \dot{q}_{i,I}$ la vitesse de réaction globale

peut se déduire de celle du sens direct en utilisant la constante d'équilibre $\mathcal{K}_{E_i} = \frac{\mathcal{K}_{D_i}}{\mathcal{K}_{I_i}}$. Elle se calcule à partir des lois de la thermodynamique. On peut voir les détails de tels développements dans [Warnatz... (1996), Dagusé (1996)]. Terminons en précisant que lorsque l'on traite des réactions de surface (Ex : gaz/solide), on rajoute dans l'**Eq.** 2.4 une fonction de la surface de réaction. Nous le verrons pour le cas des suies. Les termes sources massiques ou molaires d'espèces chimiques que nous venons de présenter nécessitent pour leurs calculs l'utilisation de tables (relatives aux schémas de cinétiques chimiques) qui contiennent les valeurs des coefficients A_i , β_i et E_i . Ce sont ces schémas que nous présentons dans les § suivants.

2.2.2 Schéma cinétique des suies

2.2.2.1 Généralités : physique et agrégats

L'existence d'un système passe par différents états. Il existe des conditions (proches de points critiques) où les corrélations entre les éléments du système deviennent très fortes et où les phénomènes de groupe prédominent. De manière plus large, par expérience, on constate des phénomènes d'auto-organisation qui sont irréversibles dans les systèmes hors-équilibre [Vidal... (1994)].

Les agrégats de suies offrent un exemple tout à fait remarquable d'une telle organisation avec l'émergence de structures de type fractal (figure dont les propriétés géométriques sont invariantes par changements d'échelle [Julien... (1987), Mandelbrot (1995)]). Jugés très complexes, il faut attendre Forrest et Witten (1979), inspirés par la théorie des phénomènes critiques, pour avoir la première interprétation des agrégats en termes de lois d'échelle pour les aérosols [Gouyet (1996)]. C'est en gardant à l'esprit, la complexité de la structure poreuse des suies que nous abordons les mécanismes conduisant à leur formation. L'agrégation s'appuie sur des idées fondamentales que nous allons retrouver dans les descriptions proposées pour la formation des suies.

2.2.2.2 Phénoménologie : la chimie des suies

La littérature sur les cinétiques de formation des suies est très vaste. C'est un domaine où il reste actuellement de nombreuses incertitudes [Warnatz... (1996)]. La suie est un assemblage de particules carbonées, plus ou moins hydrogénées, qui peuvent se regrouper en longues chaînes parfois repliées sur elles-mêmes (**Fig.** 2.6 page 30). Pour des suies fraîchement formées, le rapport molaire H/C vaut 1 [Warnatz... (1996)] puis il tend vers 0. Des mesures de températures et de richesses dans les flammes [Calcotte (1981)] ont montré la nature hors-équilibre thermodynamique du processus de formation des suies. D'un point de vue chimique, on dit que la production de suies est sous contrôle cinétique.

La température, la richesse du milieu, et la nature du combustible sont trois facteurs importants. La production de suie croît avec la richesse [Calcotte (1981), Borghi... (1995)] et les fractions volumiques⁵ de suies peuvent atteindre des valeurs entre 10^{-9} et 10^{-6} , voire 10^{-5} . Les cinéticiens ont pour objectif de poser les bases des chemins réactionnels menant à la formation des agrégats de suie. La transformation gaz/solide (**Fig.** 2.2) est un phénomène qui passe par l'intermédiaire de structures aromatiques. Bien que définir chimiquement les suies soit un problème d'actualité, on arrive à trouver un consensus autour des idées suivantes. C'est par pyrolyse des produits de la combustion que la formation des suies est en général initiée. On a constaté [Calcotte (1981)] deux régimes : une faible dépendance en température au dessous de 1800 K et une plus forte au dessus. Les radicaux libres semblent jouer, avec les HAP, un rôle fondamental comme le montrent [Frenklach... (1988)] et [Howard (1988)]. On évalue entre 10 et 30% les liaisons périphériques C-H des HAP qui se transforment en sites réactifs, après arrachement de l'atome d'hydrogène (mécanisme HACA) permettant l'assemblage complexe de radicaux phényle (C_6H_5).

Les HAP sont donc étroitement liés à la formation de suies. Le plus petit des aromatiques est le benzène C_6H_6 (dont on voit des assemblages **Fig.** 2.2). Quelque soit le combustible, il serait un point de passage obligé vers la formation des suies (**Fig.** 2.3). En amont, en revanche, la formation du benzène dépend de l'hydrocarbure d'origine. Le chemin n'est pas unique. On distingue trois chemins principaux menant au benzène selon la légèreté de l'hydrocarbure :

- **Voie 1** : Le benzène C_6H_6 se forme sous l'action de recombinaisons de radicaux propar-

⁵qui est le rapport entre le volume occupé par les suies et le volume total des constituants.

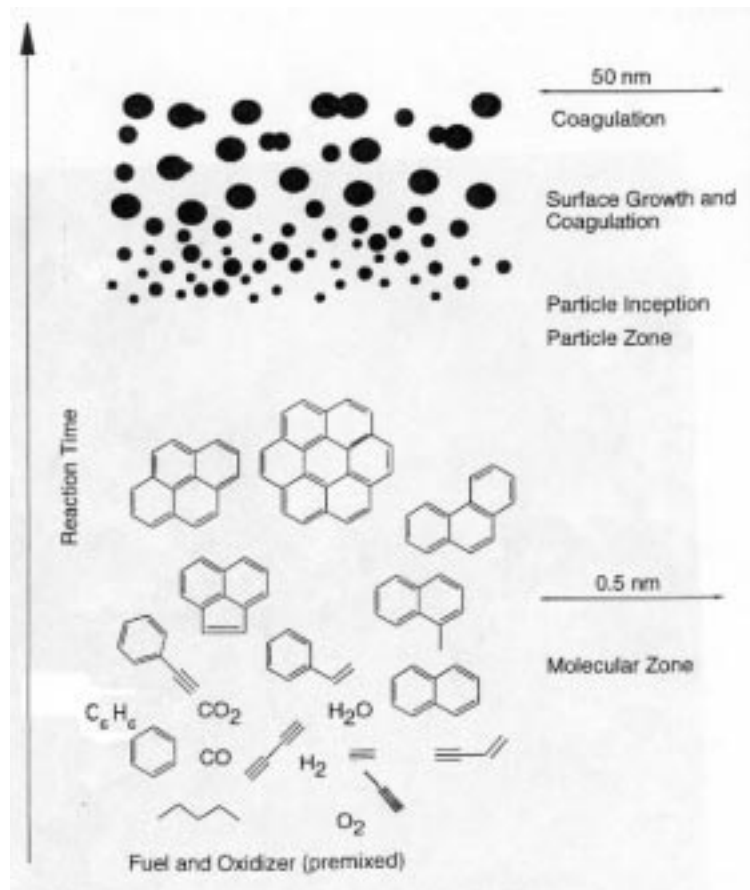


FIG. 2.2 – Schématisation de la formation des suies extrait de [Bockhorn (1994)]

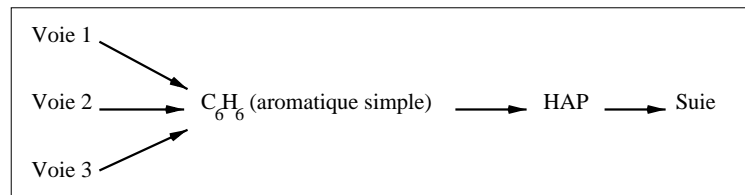


FIG. 2.3 – Principales voies réactionnelles menant à la formation des suies [com (2000)]

gyl C_3H_3 . A la base de ce mécanisme, on trouve l'acétylène C_2H_2 et le propyne C_3H_4 . Pour une flamme de méthane, il y a des régimes peu éloignés de la stoechiométrie où la conversion en acétylène peut devenir très importante comme le montre la **Fig. 2.4**

- **Voie 2** : Le propène C_3H_6 permet également d'arriver à la formation du benzène, en passant par le 1,3-cyclohexadiène

- **Voie 3** : Cette dernière solution part du 1,3-Butadiène pour arriver au benzène

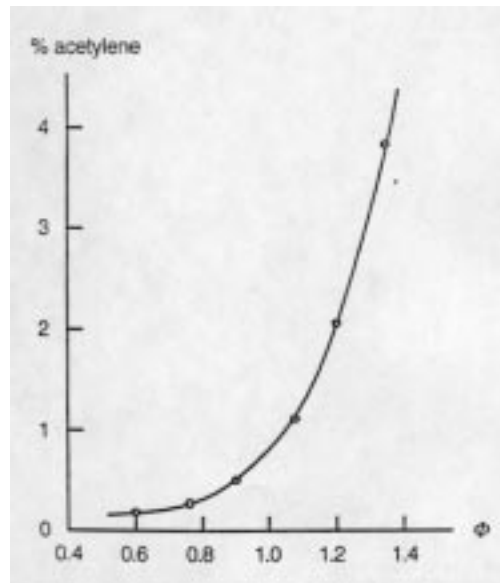


FIG. 2.4 – Pourcentage de carburant converti en acétylène en fonction de la richesse dans une flamme de méthane [Warnatz... (1996)]

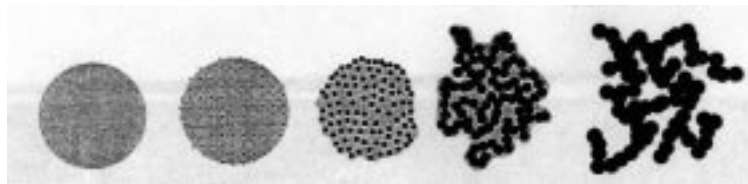


FIG. 2.5 – Schéma des étapes menant à la formation des agrégats de suie, extrait de [Reilly... (2000)]

Quelque soit le chemin réactionnel prépondérant il y a une première phase dans la formation des suies qui s'appelle **nucléation**. Les premiers germes ou nuclei de suies y sont formés. Mal connue, la nucléation s'accompagne d'une croissance dont la rapidité s'expliquerait par des mécanismes radicalaires. Les nombreux radicaux libres mis en jeu, favorisent leur propre production par autocatalyse ou effet de groupe et provoqueraient un emballement du phénomène. On obtient des sphérules i.e un assemblage sphérique de 1 à 2 nm de diamètre dont le volume est essentiellement dû aux atomes de carbone (**Fig. 2.5 :2^{ème}** pictogramme). On évalue entre 60 et 100 le nombre d'atomes de carbone contenus dans ces germes de suie [Leung... (1991), Beltrame... (2001)]. Une très grande énergie d'activation caractérise cette

étape. Les constantes de temps sont donc très grandes et cela permet de traiter en première approximation la formation des suies comme un post-traitement vis à vis d'un équilibre chimique gazeux déjà établi. Il existe une polémique sur la nature ionique ou non des nuclei. Une étude récente [Hall Roberts... (2000)] semble indiquer la neutralité des intermédiaires réactionnels.

La seconde étape correspond à une **croissance** (plus lente) des sphérules qui atteignent des diamètres de 10 à 50 nm (**Fig. 2.5** : 3^{eme} pictogramme). Une baisse de réactivité du mécanisme de nucléation, laisse place ici à une croissance de surface qui est plus lente. Les nuclei deviennent des sphérules par absorption de molécules légères (acétylène) ou plus lourdes (HAP).

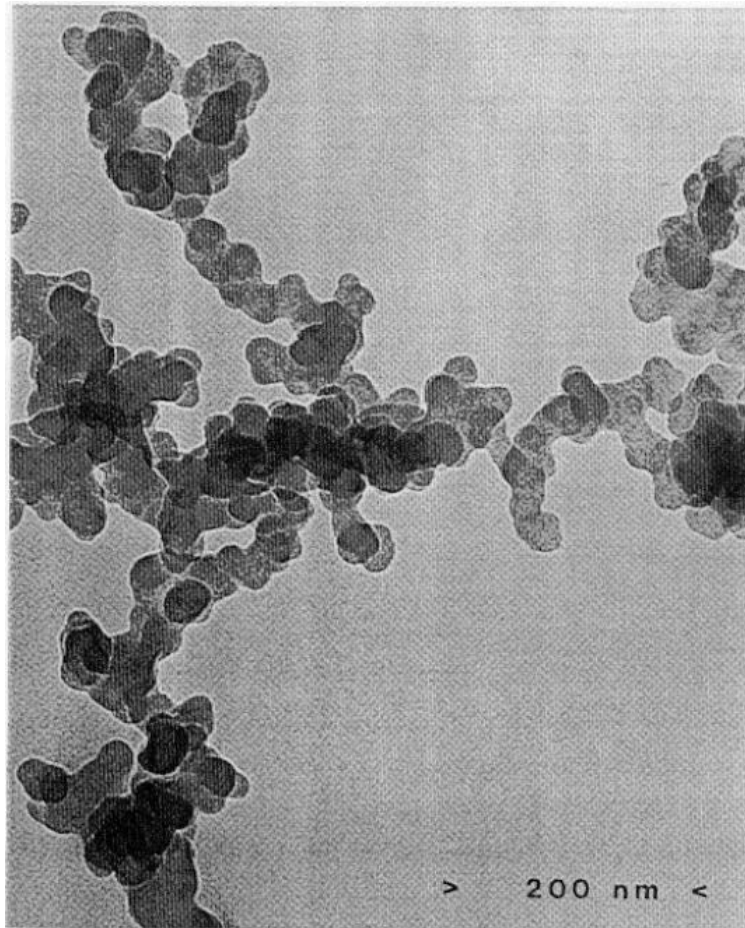


FIG. 2.6 – Photo de suies extraite de [Bockhorn (1994)]

Deux autres phénomènes interviennent simultanément. Il s'agit de l'**oxydation** et de l'**agglomération**. L'**oxydation** se décompose en différents processus qui dépendent de la manière dont l'oxygène diffuse dans la particule de suie. Les oxydants des suies ne se réduisent pas à l'oxygène. L'espèce OH est également un oxydant important⁶, mais il est rarement pris en compte dans les modèles.

L'**agglomération** des sphérules est la quatrième et dernière étape (**Fig. 2.5** : 4^{ème}, 5^{ème} pictogrammes et **Fig. 2.6**). C'est l'assemblage des sphérules qui ont été produits au moment de l'étape de croissance qui forme un agrégat de suie. C'est un processus qui reste mal compris dans les régimes extrêmes du nombre de Knudsen, que nous n'aborderons pas : $K_n = \frac{\lambda}{d_p} \gg 1$ et $K_n \ll 1$ où d_p est le diamètre de la particule et λ son libre parcours moyen [Kennedy (1997)].

2.2.2.3 Vers le choix d'un modèle de cinétique de suies

Alors que pour suivre l'évolution de la quantité de gaz il suffit de connaître la fraction molaire (ou massique), pour les suies nous avons besoin de deux observables :

- f_v : la fraction volumique de suie qui varie lors des phases de nucléation, de croissance et d'oxydation.

$$f_v = \frac{\text{volume de suie}}{\text{volume total des constituants}} [m^3/m^3]$$

- N_{part} : le nombre de particules de suie par unité de volume qui varie lors de la nucléation, de l'oxydation et de l'agglomération.

$$N_{part} = \frac{\text{nombre de particules}}{\text{volume total des constituants}} [m^{-3}]$$

Sous l'hypothèse de particules sphériques, ces deux variables sont liées par la relation suivante où d_p est le diamètre des particules de suies (nuclei, sphérule ou agglomérat)⁷.

$$f_v = \frac{\pi}{6} N_{part} d_p^3$$

La grande famille des modèles cinétiques de suie est largement documentée depuis une bonne dizaine d'années [Jander... (1990), Bockhorn (1994)]. On peut souligner l'excellente

⁶surtout dans la zone du côté du carburant [Puri... (1994)].

⁷ceci n'est vrai que si d_p est un diamètre moyen apparent construit à partir d'une moyenne volumétrique.

synthèse de [Kennedy (1997)] qui montre notamment que le choix d'un modèle dépend du combustible utilisé. Choisir un modèle de suie, c'est implicitement commencer à faire le choix d'un combustible. Inversement, choisir un combustible ne peut être dissocié de l'existence d'un modèle de suie adéquat.

Pour la flamme de diffusion laminaire, les modèles de cinétiques de suie les plus simples sont à une variable (f_v est fonction de la fraction de mélange) ou à deux variables (la fraction volumique et la densité de particules). Colket et Hall dans [Bockhorn (1994)] trouvent des résultats de fraction volumique de suies très sensibles aux choix des germes de suies (nuclei). Lors de la phase de croissance, une étude de sensibilité à différents choix paramétriques pour les modèles de croissance (Colket, Hall dans [Bockhorn (1994)]) montre que le modèle de croissance peut changer la fraction volumique de suie f_v de 2 à 3 décades. Il faut donc s'efforcer de choisir le modèle qui correspond le mieux au type de flamme que nous souhaitons modéliser. Plus l'hydrocarbure est léger, plus le modèle de suie sera simple. Pour une flamme à jets opposés de méthane [Kennedy (1997)] répertorie principalement deux modèles. Le premier d'entre-eux est celui de [Hall... (1997)] qui se veut le plus détaillé possible et qui notamment utilise une nucléation à base d'acétylène et de dérivés benzéniques⁸. Le second est plus simple. Il s'agit du modèle de [Leung... (1991), Lindstedt (1992), Lindstedt (1994)] qui utilise uniquement le C_2H_2 comme précurseur de suie.

A la recherche de la mise en oeuvre d'un couplage formation de suie/rayonnement, nous souhaitons sélectionner un modèle de cinétique de suies le plus simple possible mais dont les résultats auront été largement discutés dans la littérature. Il doit exhiber les caractéristiques essentielles des mécanismes fondamentaux du couplage car notre objectif ne concerne pas strictement la physique de la flamme à jets opposés. Cette dernière est l'occasion de mettre en oeuvre un couplage radiatif avec un système gaz et suies. Cette raison, ainsi que la complexité de phénomènes de formation de suie encore mal cernée, encouragent l'utilisation d'un modèle paramétrisé. Notre choix s'est donc porté sur le modèle de [Lindstedt (1994)] parce qu'il utilise uniquement le C_2H_2 comme précurseur de suie. Il est adapté aux flammes de diffusion laminares à co-courant et contre-courant pour différents carburants dont le CH_4 . Son utilisation par [Sivathanu... (1994)] couplée avec le transfert radiatif a montré

⁸La prise en compte explicite des radicaux phényle dans le processus de nucléation nécessite alors un modèle de cinétiques de gaz qui s'étend jusqu'à la famille des carbones C_6 .

une relative cohérence avec des mesures expérimentales [Kennedy (1997)]. En pratique, nous nous en tiendrons à l'étude d'une flamme de CH_4 dont le mécanisme d'oxydation bien connu sera présenté dans le § "Schéma cinétique des gaz".

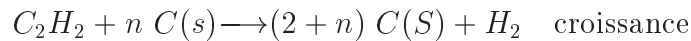
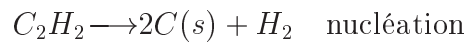
D'un point de vue cinétique chimique, nous pouvons donc compter sur un modèle détaillé et bien connu de cinétique de méthane pour nous permettre de produire l'intermédiaire réactionnel C_2H_2 . Les incertitudes sont donc principalement reportées dans le modèle de suie. Suivant les remarques de [Lindstedt (1992)] concernant les faibles temps de séjour des réactifs dans les flammes à jets opposés, en première approximation nous négligerons la phase d'oxydation. Les très grandes énergies d'activation que nécessitent ces processus, nous autorisent à traiter la formation des suies comme découplée d'un équilibre chimique gazeux déjà établi. C'est à dire que nous ne prendrons pas en compte les éventuels effets de rétroaction des suies sur la cinétique des gaz. Pour simplifier, on supposera localement n'avoir qu'une seule classe granulométrique de particules.

D'un point de vue énergétique, les suies seront supposées être en équilibre thermique avec le gaz. Le calcul du terme source radiatif limite nos besoins à la connaissance de la fraction volumique de suie f_v : la phase d'agglomération a donc peu d'importance. Le taux de dégagement de chaleur issu de la formation des suies n'est pas utilisé dans le bilan d'énergie. En revanche, on a pris soin à ce que la valeur de f_v varie avec la température et à ce que son influence sur les transferts radiatifs soit prise en compte. On peut démontrer pour les flammes de CH_4 que nous pouvons négliger la part du rayonnement diffusé par les particules. On s'attend à ce que les quantités de suies formées puissent être très faibles, voire inexistantes. Le modèle radiatif devra donc être en mesure de balayer une gamme de régimes allant des gaz propres à un milieu fortement chargé en suies. Bien que peu rayonnante et produisant peu de suie, cette flamme s'est imposée comme base pour un premier test à notre démarche de couplage dans un contexte cinétique relativement bien maîtrisé. Les § suivants détaillent les modèles de combustion que nous venons ainsi de sélectionner.

2.2.2.4 Modèle macroscopique de cinétique de suie pour une flamme laminaire de méthane à jets opposés [Lindstedt (1994)]

Nous présentons ici seulement les équations du modèle de cinétique de suies sans rentrer dans les détails de leur établissement.

Nous allons nous limiter aux phases de nucléation et de croissance du modèle de Lindstedt en supposant localement une seule classe granulométrique de particules sphériques et en négligeant les effets d'accumulation qui pourraient être traduits par des équations de transport : convection et effet thermophorétique. Seule l'énergétique liée aux transferts radiatifs sera rigoureusement prise en compte. C'est le temps de séjour local des réactifs qui permet de prendre en compte l'aspect temporel dans les équations de cinétiques. La première réaction (nucléation) est décrite par un modèle homogène, et la seconde (croissance) par un modèle de front où la surface de réaction joue un rôle important :



Pour la première réaction (nucléation) Leung et Lindstedt proposent une équation de modèle homogène d'ordre un :

$$\frac{d[C(s)]}{dt} = k_1(T)[C_2H_2] \quad (2.5)$$

avec $k_1(T)$ la constante cinétique d'Arrhénius qui vaut : $k_1(T) = 0.1 * 10^5 . e^{-21100/T}$ [1/s]. La quantité de nuclei est donc directement proportionnelle à la concentration de C_2H_2 . A cette étape on peut calculer la fraction volumique de suie f_v , la concentration molaire de suie $[C(s)]$, et le nombre de particules par unité de volume N_{part} en sachant qu'un nuclei est constitué d'environ 100 atomes de carbone et que son diamètre vaut $1,24.10^{-9}$ m [Lindstedt (1992)].

f_v se calcule en faisant le rapport entre le volume de suie sur le volume total de tous les constituants. Pour cela, on a besoin du volume molaire de suie que nous calculons en prenant $\rho_{C(s)} = 1950 \text{ kg.m}^{-3}$ pour la densité du carbone et $M_{C(s)} = 12.01 \text{ g/mol}$ pour sa masse molaire. Nous utilisons la loi des gaz parfaits pour calculer le volume molaire des gaz.

N_{part} s'obtient en faisant le rapport entre la fraction volumique et le volume d'un nuclei⁹.

⁹Il est calculé en prenant 100 atomes de carbone dans un nuclei conformément à [Lindstedt (1992)]

Pour l'étape de croissance, Leung et Lindstedt donnent l'équation de production suivante :

$$\frac{d[C(S)]}{dt} = k_2(T) \cdot f(s) \cdot [C_2H_2] \cdot [C(s)]^{1/3} \cdot (N_{part})^{1/6} \quad (2.6)$$

où :

$$k_2(T) = 0,6 \cdot 10^4 e^{-12100/T}$$

et

$$f(s) = \sqrt{\pi \left(\frac{6M_{C(s)}}{\pi \rho_{C(s)}} \right)^{2/3}}$$

La fonction $f(s)$ permet de tenir compte d'une réaction de surface qui dans le cas des suies se produit sur un ensemble de sites réactionnels bien distincts.

2.2.3 Schéma cinétique des gaz

Les réactions d'oxydation du méthane sont bien documentées [Leung... (1995)]. On peut y trouver des modèles réduits de bonne qualité [Jones... (1988)] avec une dizaine de réactions. Pour comprendre les mécanismes de couplage entre la formation d'espèces mineures et le transfert radiatif, nous avons besoin d'un code de combustion avec une chimie détaillée. C'est pour cela que nous utiliserons un mécanisme cinétique avec de nombreuses réactions.

En l'absence d'extinction, un aliphatique est d'abord décomposé dans des familles à un ou deux atomes de carbone [Warnatz (1981)], puis ensuite, les hydrocarbures plus lourds¹⁰ sont formés. L'oxydation du méthane peut donc se décomposer en deux filières principales à un et deux carbones (**Fig.2.7**). Le C_2H_2 étant le point de passage obligé vers les voies réactionnelles menant aux hydrocarbures plus lourds (HAP et suies).

Nous utilisons le mécanisme GRImech [Bowman... (1999 last visited)] pour l'oxydation du méthane dans sa version 2.1 à 48 espèces et 279 réactions (Cf. Annexe 1).

¹⁰les HAP, et les suies

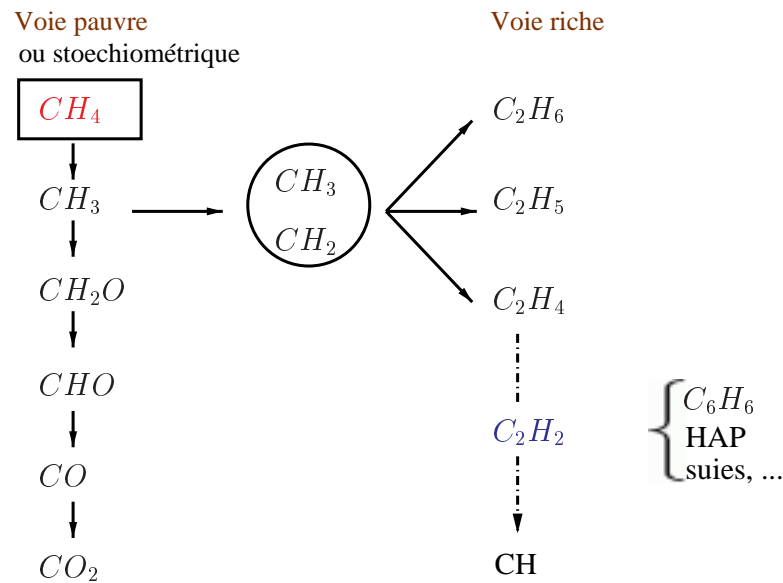


FIG. 2.7 – Schéma simplifié d'oxydation du méthane

2.3 Modèle macroscopique de combustion pour la flamme laminaire à jets opposés

Nous allons maintenant présenter les éléments qui composent le modèle d'aéro-thermo-chimie. On mettra l'accent sur les hypothèses à partir desquelles il est construit. Nous présenterons dans l'ordre : les variables, les propriétés thermodynamiques et diffusives, et les équations de conservation.

2.3.1 Définition des variables

Pour décrire correctement l'écoulement réactif, complétons les variables chimiques, déjà introduites. Pour la k^{eme} espèce on note : M_k sa masse molaire, X_k sa fraction molaire, Y_k sa fraction massique, ρ_k sa densité, v_k sa vitesse hydrodynamique, c_{p_k} sa chaleur massique à pression constante, h_k son enthalpie massique à pression constante, $j_{k,y}$ son flux de diffusion dans la direction y , et w_k sa vitesse de formation. On note ν_{cin} la viscosité cinématique du mélange.

Pour le mélange, on a :

$$\begin{aligned}\rho &= \sum_{k=1}^K \rho_k \\ \rho \mathbf{v} &= \sum_{\mathbf{k}=1}^{\mathbf{K}} \rho_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \\ M &= \left(\sum_{k=1}^K \frac{Y_k}{M_k} \right)^{-1}\end{aligned}$$

Pour chaque espèce :

$$\begin{aligned}Y_k &= \frac{\rho_k}{\rho} \\ X_k &= Y_k \frac{M}{M_k} \\ \mathbf{V}_{\mathbf{k}} &= \mathbf{v}_{\mathbf{k}} - \mathbf{v}\end{aligned}$$

avec $\mathbf{V}_{\mathbf{k}}$ la vitesse de diffusion.

La conservation de la masse permet d'écrire trois égalités :

$$\begin{aligned}\sum_{k=1}^K Y_k &= 1 \\ \sum_{k=1}^K X_k &= 1 \\ \sum_{k=1}^K Y_k \mathbf{V}_{\mathbf{k}} &= \mathbf{0}\end{aligned}$$

2.3.2 Propriétés thermo-chimiques et de transport : équations structurelles

Pour compléter le système formé par les équations de conservation qu'on explicitera dans le § suivant, on fait appel à des relations qui caractérisent les propriétés du fluide :

1. Lois de forces et Lois d'états : dans le bilan des forces extérieures, nous ne prenons pas en compte la force de gravitation $\vec{F} = m\vec{g}$, parce que son influence est peu significative

comme le précise [Dagusé (1996)]. Pour évaluer la pression, on suppose le gaz parfait ($P = \rho RT$). La densité du mélange peut s'écrire ainsi :

$$\rho = \frac{P}{RT \sum_{k=1}^K \frac{Y_k}{M_k}}$$

où R est la constante universelle des gaz parfaits ($8,314 \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$).

2. Lois gradients-flux : ces lois relient les flux de matière et de chaleur aux gradients : lois de Fourier, de Fick, etc... C'est l'occasion de signaler ici que la diffusion des espèces provient principalement d'un gradient de concentrations. Mais il existe également les effets Dufour et Sorret [Ern... (1995)]. Le premier est négligeable que la flamme soit laminaire ou turbulente, et le second devient important seulement s'il y a une grande différence entre les masses molaires du carburant et du comburant : c'est le cas du mélange Air/Hydrogène où il peut jouer sur des centaines de Kelvins. Pour le méthane nous n'en tenons pas compte.

2.3.3 Equations de bilan

Elles sont établies à partir des équations de Navier-Stokes en supposant l'écoulement quasi-isobare¹¹. Elles sont largement documentées [Egolfopoulos (1994), Warnatz... (1996), Dagusé (1996)]. La flamme que nous étudions **Fig.2.8** (page 39) est à géométrie de révolution. En toute généralité, les équations de conservation de type parabolique s'expriment dans un repère cylindrique bidimensionnel. On a déjà dit qu'en négligeant les dépendances dans l'axe radial \mathbf{e}_x (sauf pour la vitesse radiale) on se ramène à un système monodimensionnel : la complexité du système est ainsi réduite sous l'hypothèse de solution similaire à un système d'équations monodimensionnel sur l'axe de symétrie. Rappelons les hypothèses :

- La vitesse dans l'axe de révolution v_y , la température et les fractions massiques ne dépendent que de y : par exemple, $v_y = V_y(y)/\rho = V/\rho$
- La vitesse radiale v_x est proportionnelle à x (hypothèse d'écoulement potentiel ou approximation de Prandtl) : $v_x = x V_x(y) = xU$
- On considère les solutions proches de l'axe \mathbf{e}_y de révolution.

¹¹Le gradient de pression est présent dans l'équation de conservation de l'impulsion mais négligé dans celle de l'énergie.

[Dagusé (1996)] présente alors deux formulations : une à étirement constant, l'autre à vitesses imposées. Le modèle que nous présentons est écrit pour la seconde, plus facile à interpréter et à confronter aux données expérimentales. Sous ces hypothèses, on fait apparaître dans les équations un gradient de pression :

$$J = \partial_x P \frac{1}{x}$$

qui conserve une valeur constante dans les directions radiales \mathbf{e}_x .

Les équations de conservation se composent de l'équation de conservation de la masse, de conservation de l'impulsion (sur l'axe \mathbf{e}_y), de l'équation de conservation de chacune des espèces chimiques puis de l'équation de conservation de l'énergie. Equation de conservation de la masse :

$$\partial_t \rho + 2\rho U + \partial_y(V) = 0 \quad (2.7)$$

Equation de conservation de l'impulsion (une équation pour la composante U) :

$$\partial_t U \rho + \rho U^2 + V \partial_y U + J - \partial_y(\nu_{\text{cin}} \partial_y U) = 0 \quad (2.8)$$

Equation de conservation des espèces chimiques gazeuses, où on rappelle que $j_{k,y} = Y_k V_k \rho$ est le flux de matière de l'espèce k dans la direction \mathbf{e}_y :

$$\rho \partial_t Y_k + V \partial_y Y_k + \partial_y(j_{k,y}) - W_k = 0, \text{ Pour } k = 1 \dots K \quad (2.9)$$

Equation de conservation de l'énergie, exprimée en température (On relie l'enthalpie à la température par $dh = c_p dT$) :

$$\rho \partial_t T - \partial_t P + V \partial_y T - \frac{1}{c_p} \partial_y(\lambda \partial_y T) + \frac{1}{c_p} \left(\sum_{k=1}^K j_{k,y} c_{p_k} \right) \partial_y T + \frac{1}{c_p} \sum_{k=1}^K (h_k W_k) + \frac{s_r}{c_p} = 0 \quad (2.10)$$

où s_r est le terme source radiatif en $[W/m^3]$ positif quand le milieu est déficitaire en énergie, conformément à la convention de la normale sortante.

On définit le taux d'étirement local de la flamme par :

$$G = \partial_y V$$

2.3.4 Conditions aux limites, aux interfaces & conditions initiales

Notons d la distance entre les deux alimentations (**Fig. 2.8**). Les conditions aux limites pour les brûleurs sont constituées par les compositions chimiques, les vitesses normales, et les températures.

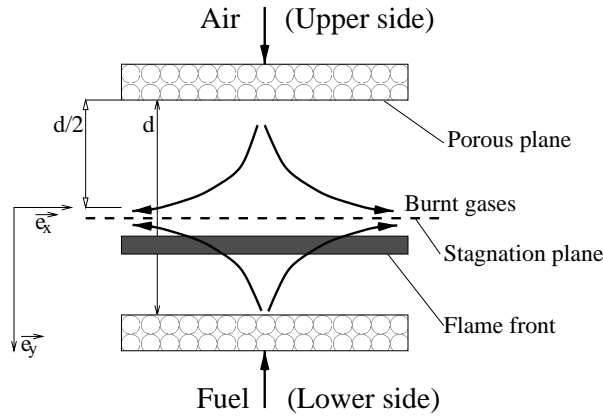


FIG. 2.8 – Schéma de la flamme plane non-prémélangée à contre-courant

En $y = +d/2$ (Lower Side) :

- $U = 0$
- $V = v_y^{0,air}$
- $T = T_y^{0,air}$
- $X_k = X_k^{0,air}$ Pour $k=1..K$ espèces

En $y = -d/2$ (Upper Side) :

- $U = 0$
- $V = v_y^{0,fuel}$
- $T = T_y^{0,fuel}$
- $X_k = X_k^{0,fuel}$ Pour $k=1..K$ espèces

Les conditions initiales ne sont jamais quelconques, des besoins numériques imposent à ce que les profils de concentrations et de température soient proches de ceux de la flamme stationnaire vers laquelle nous voulons converger. Nous exposerons cet aspect dans le § concernant la méthode numérique utilisée.

2.3.5 Termes sources

Les termes sources d'espèces chimiques et d'énergie radiative viennent clore l'ensemble des équations. Celui d'espèces chimiques a été présenté avec les modèles de cinétiques chimiques. Les données des mécanismes dont on a besoin pour le calculer (les trois coefficients d'Arrhénius) et les divers paramètres thermodynamiques sont contenus dans les tables des mécanismes chimiques (pour la phase gazeuse nous utilisons GRI_{mech} 2.1).

L'enjeu de notre travail est de proposer une représentation efficace pour le terme source d'énergie radiative s_r . Le prochain chapitre sera consacré à une discussion sur la manière d'introduire un terme source radiatif dans cet ensemble déjà important d'équations. Il sera le point de départ de tous nos développements concernant le rayonnement.

Mais avant d'y arriver, présentons l'aspect numérique associé au code de combustion.

2.4 Solution numérique au modèle de combustion et quelques exemples de résultats

Pour un tel ensemble d'équations non linéaires, il n'y a pas de solution analytique sauf dans des cas très rares en utilisant l'analyse asymptotique [Liñan (1974), Cuenot (1995)]. On est donc conduit en général à utiliser des méthodes numériques.

Le code de combustion que nous utilisons pour résoudre ce système d'équations nous a été fourni par F.N. Egolfopoulos. Il provient d'un code de flamme stationnaire [Kee... (1988), Dixon Lewis (1990)] qui utilise un schéma de discrétisation aux différences finies avec une procédure de maillage adaptatif. Il fait appel à la librairie CHEMKIN-II pour l'interprétation des tables de cinétiques chimiques, les calculs de thermo-chimie [Kee... (1989), Kee... (1986)] et de transport. [Egolfopoulos... (1996)] y a rajouté un schéma Crank-Nicolson du second ordre pour simuler une flamme instationnaire. Ce programme n'inclut pas de modèle de formation de suies en revanche, il est pourvu d'un calcul radiatif qui fait l'hypothèse d'un milieu optiquement mince (absorption négligée), et dont on peut retrouver les développements dans [Hubbard... (1978)]. Les modifications que nous apporterons à ce code concernent, la partie cinétique des suies, indépendante et découplée, qui viendra se rajouter comme un calcul

supplémentaire après chaque itération numérique du programme et la partie radiative. Les questions de mise en oeuvre dans le code, de ces deux nouveaux éléments, seront reprises dans le dernier chapitre (Chap. 6) après avoir auparavant discuté et développé le modèle radiatif.

Revenons sur la procédure numérique du code de combustion pour en donner quelques détails. Sur la base d'une discrétisation des équations par une méthode aux différences finies le code trouve la solution du système d'équations par la méthode itérative de Newton. Il lui est donc plus facile de converger lorsque l'on dispose déjà d'une solution dans des conditions pas trop éloignées de celles que l'on veut simuler. La résolution du système nécessite donc le calcul numérique de la matrice jacobienne et une condition initiale proche de la solution vers laquelle on veut converger. Le code recherche d'abord une solution pour une température fixée (pour résoudre les équations de continuité et du mouvement), puis la solution générale est calculée en introduisant l'équation de l'énergie.

Pour fixer les idées, nous présentons des résultats standards pour une flamme air/méthane pur avec un taux d'étirement global de $28,5 \text{ s}^{-1}$ calculé sur le front de flamme (**Fig. 2.9**). Ils ont été obtenus avec le code décrit auparavant. Les deux alimentations sont distantes de $2,2 \text{ cm}$ et le méthane est injecté par la droite¹². La première figure présente le taux d'étirement local avec la vitesse locale le long de l'axe \mathbf{e}_y . La combustion provoque un échauffement qui par effet de dilatation augmente la vitesse locale à l'endroit où se situe la flamme. Sur les deux figures suivantes on peut observer les concentrations du méthane et de l'air (la richesse est proche de 10) puis les concentrations des produits de la réaction (H_2O , CO_2 , CO et OH).

Le terme source radiatif est de l'ordre du million de Watts par mètre cube pour un taux d'étirement global de $28,5 \text{ s}^{-1}$. La perte maximale d'énergie radiative coïncide avec le maximum de température qui se trouve ici à 2000K . Cette correspondance sera toujours vraie par la suite.

Pour illustrer l'influence croissante du rayonnement à faible taux d'étirement sur la température nous avons fait varier ce dernier et reporté la température maximale pour plusieurs flammes avec le modèle de rayonnement sans réabsorption (OTL Hubbard) et en absence de modèle radiatif (sans rad). A très faible taux d'étirement on peut observer des écarts d'une

¹²La **Fig. 2.8**, où l'alimentation en méthane se fait par le bas, doit être retournée dans le sens trigonométrique.

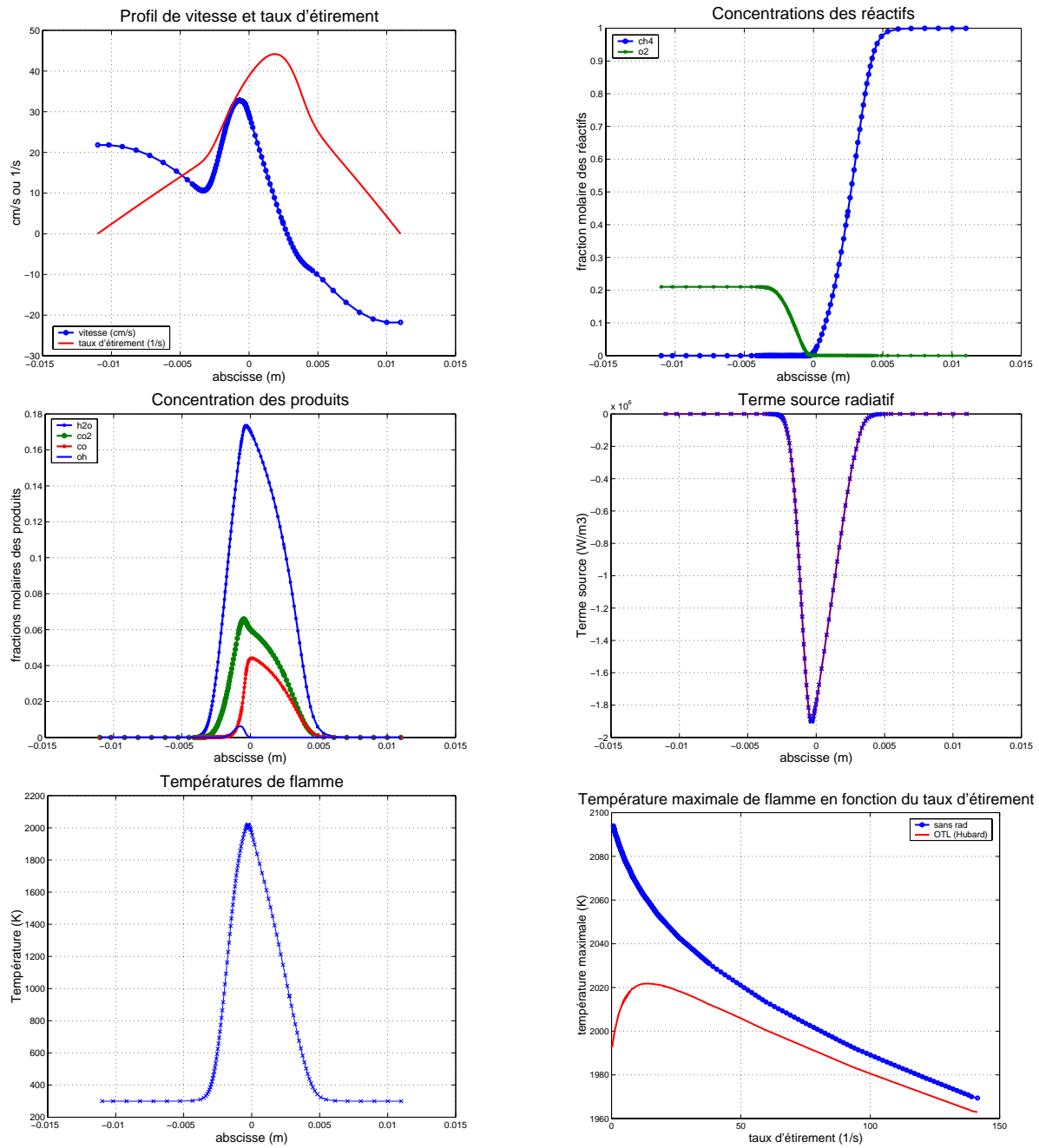


FIG. 2.9 – Profils d'une flamme à jets opposée air/méthane pur pour un taux d'étirement de $28,5 \text{ s}^{-1}$ et Evolution de sa température maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant

centaine de Kelvins. Les équilibres convecto-diffusifs sont donc modifiés à faible taux d'étiement et provoquent une influence plus grande des échanges radiatifs sur la température de flamme.

Chapitre 3

Les transferts radiatifs en combustion

Notre travail porte sur le couplage du rayonnement avec la combustion. Cet objectif déjà évoqué peut être résumé en deux points fondamentaux :

- Savoir intégrer dans l'équation de conservation de l'énergie **un bon modèle du terme source** radiatif s_r (pour un mélange gaz et suies).
- Développer **un outil d'analyse** pour aider à la détermination d' une démarche de couplage avec la combustion.

Ainsi, des pré-requis en matière de rayonnement s'imposent. Nous allons voir que, par rapport à d'autres mécanismes de transfert, les difficultés spécifiques de l'étude des transferts radiatifs sont principalement liées au fait que la détermination du terme source en un point dépend de toutes les directions de l'espace et de toutes les fréquences radiatives pour chaque direction. Nous allons développer dans les deux premières parties de ce chapitre des rappels généraux en rayonnement qui permettront d'appréhender les spécificités du transfert radiatif et de discerner les différentes méthodes de résolution radiatives. La troisième partie est un rapide point bibliographique sur la façon avec laquelle ces différentes approches radiatives ont pu être mis en oeuvre dans des applications en combustion.

3.1 Rappels sur la physique du rayonnement

3.1.1 Introduction au vocabulaire et aux difficultés de modélisation du rayonnement

Lorsqu'on s'interroge sur la physique du rayonnement, on s'aperçoit qu'elle peut être décrite simultanément par un aspect ondulatoire et corpusculaire. Chaque corpuscule, appelé photon, véhicule une énergie propre $\varepsilon = h\nu$ qui est fonction de sa fréquence ν ($= \frac{\omega}{2\pi} = \frac{c}{\lambda}$). On appellera également par la suite η le nombre d'onde qui est l'inverse de la longueur d'onde λ ($\eta = \frac{1}{\lambda}$).

Il existe différentes interprétations concernant l'origine du rayonnement. Dans les théories planétaires de l'atome ou de la molécule (de type Bohr), la structure en niveaux d'énergie des molécules est responsable d'une émission radiative sur des fréquences bien déterminées. La transition autorisée d'un électron, d'une orbitale moléculaire¹ à une autre, d'énergies différentes provoque l'émission ou l'absorption d'un photon de fréquence ν où $h\nu$ est la différence d'énergie entre les deux niveaux d'énergie moléculaire. Les raies d'émission (respectivement d'absorption) qui constituent le spectre de raies des molécules de gaz sont le résultat également de phénomènes d'élargissement qui ont plusieurs origines. Le profil de raie est donc un élément déterminant dans la modélisation des propriétés radiatives. Dans la classe des problèmes de combustion que nous abordons, ce sont les élargissements collisionnels qui dominent. Par conséquent, l'ensemble des formulations de propriétés radiatives que nous utiliserons sont établies sur la base d'un profil de raie de Lorentz.

Pour les transferts thermiques en combustion, c'est dans le domaine spectral de l'Infrarouge (I.R.) compris entre les longueurs d'onde de 0.1 à 100 μm (**Fig. 3.1**) que se rencontrent les principales applications dans le domaine des transferts énergétiques. Dans ces systèmes, le rayonnement constitue l'un des trois modes² de transfert de chaleur avec la particularité d'exister en l'absence de matière. Sa délocalisation dans l'espace constitue, avec les difficultés de description des spectres de raies, une des principales difficultés à sa modélisation. A l'échelle de phénomènes macroscopiques, il existe deux classes de modèles descriptifs du

¹Les niveaux d'énergie moléculaire sont le résultat de combinaisons entre les niveaux d'énergie électroniques, vibrationnels et rotationnels de la molécule.

²Il s'agit de la conduction, de la convection et du rayonnement.

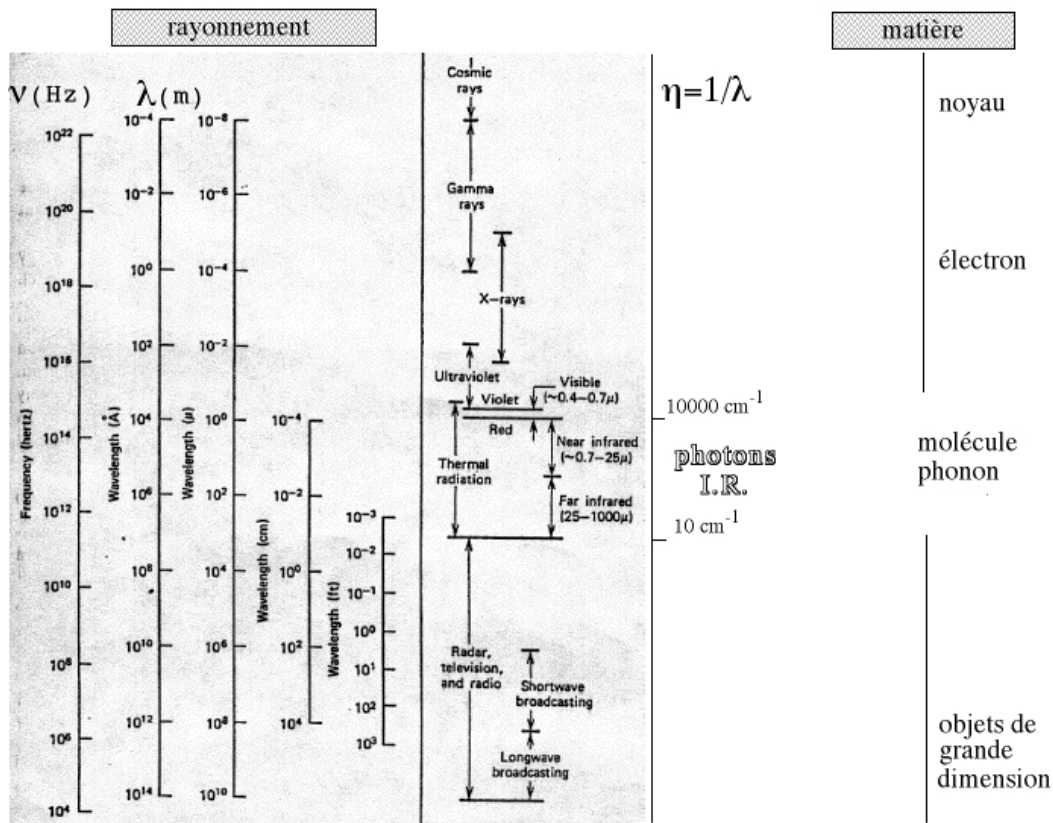


FIG. 3.1 – Différentes plages spectrales du rayonnement [Welty ()]

rayonnement : ceux fondés sur la description ondulatoire de Maxwell et ceux qui s'appuient sur la description énergétique en flux corpusculaire (ou en “paquets de photons”). Bien que pour la caractérisation des propriétés spectrales des particules de suies on a tendance à utiliser une approche ondulatoire, dans le domaine des transferts radiatifs infrarouges on utilise principalement une description énergétique des transferts radiatifs en milieu semi-transparent. C'est par cette dernière que nous poursuivons notre exposé. Suivent deux § supplémentaires, l'un concernant les spectres de raies des gaz et l'autre concernant les propriétés spectrales des particules de suies.

3.1.2 Transferts radiatifs en milieu semi-transparent

Les configurations rencontrées en combustion peuvent le plus souvent se ramener à l'image générique d'un volume de gaz confiné par des parois solides opaques³ au rayonnement infra-rouge. Le cadre radiatif général qui sera le notre sera donc celui de l'étude d'un milieu semi-transparent au sein d'une cavité fermée, sachant que nous qualifions de "semi-transparents" des milieux (tels que les gaz de combustion) qui peuvent à la fois transmettre, absorber, émettre et parfois diffuser une puissance radiative.

3.1.2.1 Définition de la luminance

Les formulations énergétiques que nous utiliserons ont à leur base une grandeur radiative qu'on appelle luminance. L'énergie rayonnante se distingue selon sa direction de propagation et le point de vue de l'observateur. Notons $d^4\varphi$ le flux d'énergie rayonnant, au voisinage d'un point P, à travers une surface fictive dS de normale \mathbf{e}_n , dans l'angle solide $d\Omega$ autour de la direction \mathbf{e}_Ω , pour l'intervalle de fréquence $d\nu$ autour de ν et pendant l'intervalle de temps dt autour de t . La luminance $L(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega, \nu, t)$ correspondante est alors définie de sorte qu'est vérifiée la relation de proportionnalité suivante :

$$d^4\varphi = L(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega, \nu, t) \cdot \mathbf{e}_n \cdot \mathbf{e}_\Omega \cdot dS \cdot d\Omega \cdot d\nu \cdot dt = L(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega, \nu, t) \cdot \cos(\theta) \cdot dS \cdot d\Omega \cdot d\nu \cdot dt$$

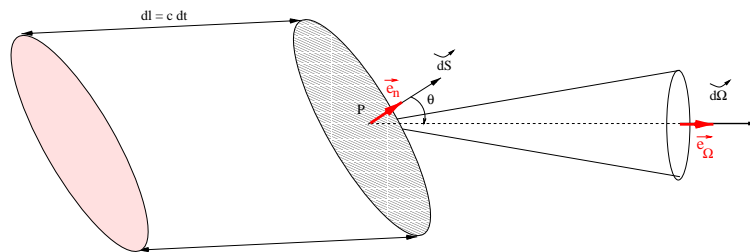


FIG. 3.2 – La luminance

La luminance est donc une densité d'énergie surfacique directionnelle spectrale par unité de temps [J/m² /str /Hz /s]. Par la suite, nous indiquerons la luminance par le nombre d'onde η et nous masquerons la dépendance temporelle : $L(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega, \nu, t) \equiv L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)$.

³Nous verrons que pour notre étude de couplage avec la flamme à jets opposés, une hypothèse de parois noires sera largement suffisante. En effet, sans confinement l'environnement qui l'entoure peut en première approximation être considéré comme un corps noir à la température ambiante.

3.1.2.2 Luminance noire

Le rayonnement d'équilibre d'une cavité fermée isotherme a des propriétés remarquables. Il ne dépend que de la température de la cavité. Par un orifice infiniment petit pratiqué sur cette dernière est émis un rayonnement d'équilibre. On l'appelle rayonnement noir et la surface de l'orifice est également appelée corps noir. Un corps noir absorbe la totalité du rayonnement qui lui arrive et l'énergie qu'il émet se répartit sur une large gamme de fréquences (ou de nombres d'onde) selon la loi de Planck. On appellera luminance noire $L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)$, la luminance d'un corps noir à la température $T(\mathbf{r}_P)$ observée au point P. Elle a pour expression :

$$L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) = \frac{2 * hc^2 \eta^3}{\exp\left(\frac{hc\eta}{k_B T(\mathbf{r}_P)}\right) - 1} \quad (3.1)$$

avec k_B la constante de Boltzmann.

3.1.2.3 Coefficient d'absorption et de diffusion

Pour les Milieux Semi-Transparents (M.S.T.) on caractérise la manière dont le rayonnement est absorbé, émis ou diffusé⁴ par la matière en utilisant des coefficients monochromatiques d'absorption $\kappa_{a,\eta}$, d'émission $\kappa_{e,\eta}$, de diffusion σ_η et une fonction de phase Φ pour indiquer la distribution angulaire de l'énergie radiative diffusée. En supposant l'équilibre thermodynamique local (E.T.L.), on égale les coefficients d'absorption et d'émission⁵ notés indifféremment κ_η par la suite et l'émission radiative volumique monochromatique directionnelle au point P est isotrope et s'exprime par $\kappa L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)$. On utilise également la transmittivité monochromatique qui représente la fraction de rayonnement qui est transmise le long d'une colonne de longueur l :

$$\tau_\eta(0 \rightarrow l) = \exp\left(-\int_{x=0}^l \kappa_\eta(x) dx\right) \quad (3.2)$$

qui lorsque le milieu est homogène devient :

$$\tau_\eta(l) = \exp(-\kappa_\eta l) \quad (3.3)$$

⁴Avec trois contributions : la réflexion, la réfraction et la diffraction

⁵Cf. lois de Kirchhoff

3.1.2.4 L'Equation de Transfert Radiatif : ETR

L'Equation de Transfert Radiatif (ETR) s'établit à partir d'un bilan radiatif sur un petit volume (**Fig. 3.3**) centré en un point P (localisé par le vecteur \mathbf{r}_P), dans une direction de visée \mathbf{e}_Ω sur laquelle se propage le rayonnement considéré. On peut en trouver des démonstrations élégantes dans [Howell (1988), Goody (1989)]. Si on fait les hypothèses suivantes :

- indice de réfraction uniforme ;
- pas d'effet de polarisation du rayonnement ;
- équilibre thermodynamique local ;
- rapidité des échanges radiatifs devant les autres modes d'échange

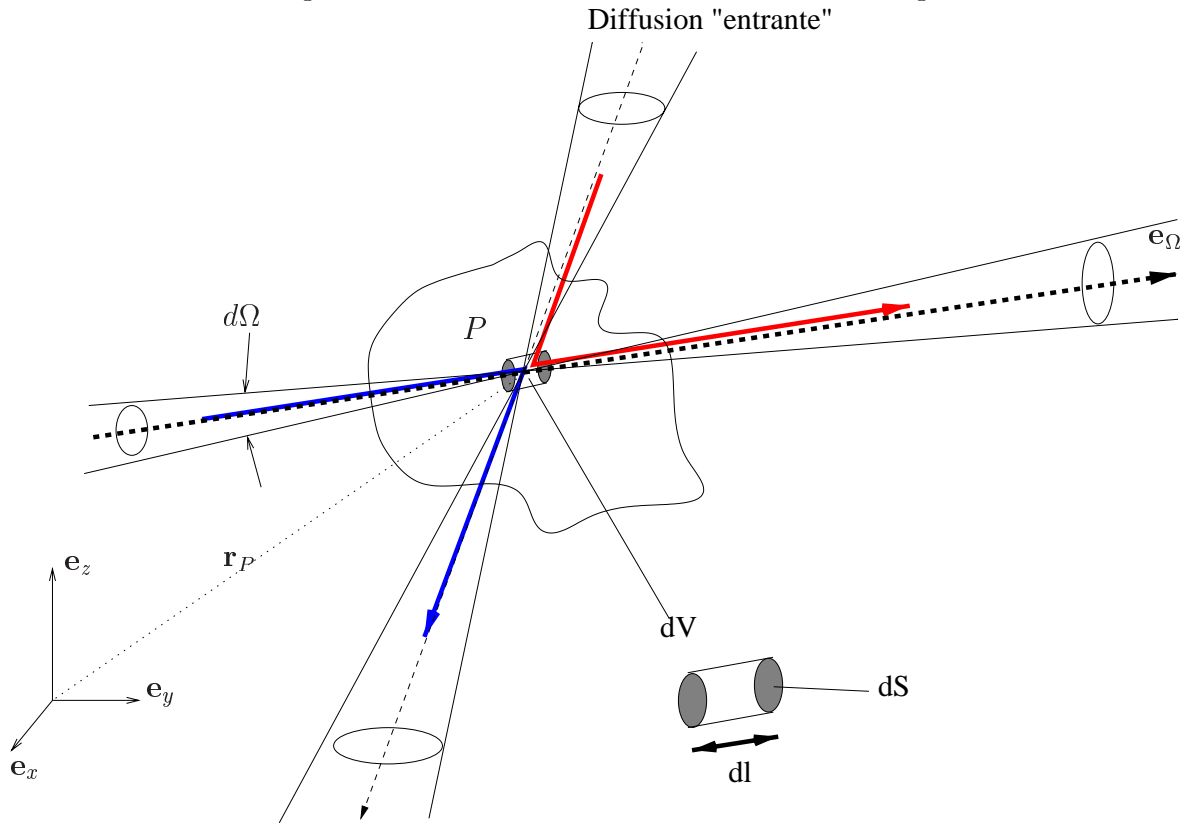


FIG. 3.3 – Conservation de la luminance dans un volume

l'ETR peut se mettre sous la forme différentielle suivante :

$$\mathbf{e}_\Omega \cdot \partial_{\mathbf{r}_P} L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) = - \underbrace{\kappa_\eta L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)}_{\text{absorption}} + \underbrace{\kappa_\eta L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)}_{\text{émission}} - \underbrace{\sigma_\eta L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)}_{\text{diffusion}} + \underbrace{\frac{\sigma_\eta}{4\pi} \int_{\Omega'=4\pi} d\Omega' L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}'_\Omega) \Phi(\mathbf{e}_\Omega, \mathbf{e}'_\Omega)}_{\text{diffusion \"entrante\"}} \quad (3.4)$$

Dans les problèmes que nous traiterons, le milieu est supposé non diffusant ce qui nous permet de ne considérer que l'expression simplifiée de l'ETR en l'absence de diffusion :

$$\mathbf{e}_\Omega \cdot \partial_{\mathbf{r}_P} L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) = \kappa_\eta [L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) - L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)] \quad (3.5)$$

Nous l'appellerons forme **différentielle** de l'ETR ⁶.

La forme intégrale de l'ETR sans diffusion s'obtient à partir de l'**Eq. 3.5** en résolvant l'équation sans second membre associée :

$$\mathbf{e}_\Omega \cdot \partial_{\mathbf{r}_P} L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) + \kappa_\eta L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) = 0$$

puis en reportant la solution obtenue dans l'**Eq. 3.5**, par la méthode de la variation de la constante, on obtient l'équation suivante intégrée entre une origine P_0 et un point P de la ligne de visée repéré par \mathbf{r}_P :

$$L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) = L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) + \int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P'}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P'} \rightarrow \mathbf{r}_P) \quad (3.6)$$

C'est la forme **intégrale** de l'ETR. Le premier terme du second membre représente le rayonnement incident au point P_0 et qui est transmis jusqu'au point P . Le terme intégral qui suit représente la somme de la contribution du rayonnement émis dans la direction de visée en chaque point P' compris entre P_0 et P et qui est transmis jusqu'à P .

3.1.2.5 Corrélations spectrales

On est souvent conduit à considérer l'intégration de l'**Eq. 3.5** et l'**Eq. 3.6** sur une bande de fréquence. Supposons pour simplifier que cette bande de fréquence soit suffisamment étroite pour que la luminance noire puisse être supposée constante (bande étroite). On obtient alors :

$$\mathbf{e}_\Omega \cdot \partial_{\mathbf{r}_P} \langle L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \rangle = \langle \kappa_\eta \rangle \langle L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \rangle - \langle \kappa_\eta L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \rangle$$

et

$$\langle L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \rangle = \langle L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \rangle + \int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega \langle L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) \rangle \langle \kappa_\eta \tau_\eta \rangle$$

⁶A ne pas confondre avec les formes intégrale et différentielle qui désignent en mécanique des fluides et en électromagnétisme des formules intégrées en volume ou non. Elles seront appelées dans ce document écriture faible (pour la forme intégrale) et écriture forte (pour la forme différentielle)

Les termes dont on connaît la dépendance spectrale ne posent aucun problème de corrélation (termes en luminance noire, le produit $\kappa_\eta \tau_\eta$). En revanche, ce sont le terme de conditions aux limites $\langle L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \rangle$ de la formulation intégrale et le terme $\langle \kappa_\eta L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \rangle$ de la formulation différentielle qui sont difficiles à modéliser du fait des corrélations spectrales possibles entre la luminance d'une part et la transmittivité ou le coefficient d'absorption d'autre part.

En pratique pour une formulation intégrale, il y a pour le terme $\langle L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \rangle$, deux conditions pour lesquelles on peut contourner cette difficulté :

- En \mathbf{r}_{P_0} on a une surface noire (la dépendance spectrale de $L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega)$ est alors celle de la luminance noire).
- En \mathbf{r}_{P_0} la surface est quelconque mais la résolution est assurée par une méthode qui permet de reconstituer la dépendance fréquentielle de $L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega)$. C'est le cas des méthodes dans lesquelles on a accès à toute la physique des transferts d'énergie depuis chaque lieu d'émission (Ex : méthode par tracé/suivi de rayons).

Pour une formulation différentielle, si une décorrélation est proposée, elle doit être justifiée en tout point du domaine d'étude. Dans le cas général, on retiendra que l'utilisation de l'ETR intégrée sur une bande de fréquence nécessite de pouvoir proposer des modèles de corrélations ou de justifier des hypothèses de décorrélation spectrale.

3.1.2.6 Passage du champ de luminances au terme source radiatif volumique

Lorsque l'on connaît le champ de luminance pour chaque direction, on peut construire en tout point le vecteur flux radiatif à partir de l'expression :

$$\mathbf{q}_r = \int_0^\infty d\eta \mathbf{q}_{r,\eta} = \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \mathbf{e}_\Omega$$

Le terme source radiatif volumique est alors :

$$s_r = \text{div } \mathbf{q}_r = \nabla \cdot \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \mathbf{e}_\Omega$$

Pour compléter ces quelques rappels en rayonnement, nous présentons par la suite des éléments supplémentaires concernant les propriétés radiatives des gaz et des particules de suie.

3.1.3 Spectre de raies des gaz de combustion

Au § 3.1.1 nous avons évoqué les propriétés spectrales des molécules de gaz dans l'infrarouge. De ce fait, les spectres d'absorption-émission des gaz de combustion sont composés d'un grand nombre de raies dont, par défaut, nous supposons ici qu'elles sont de forme lorentzienne.

L'enjeu de modèles facilement utilisable dans un code de calcul, c'est d'avoir un nombre de paramètres réduits. A l'opposé, les spectres gazeux semblent si complexes que trouver un modèle pour les représenter semble très délicat. Il y a donc un compromis à trouver lorsqu'on cherche à décrire les propriétés spectrales des gaz. Dans ce cadre, il existe quatre types de modèles [Taine... (1998)], le plus précis d'entre eux est le modèle raie par raie par lequel nous commençons notre présentation.

3.1.3.1 Modèle raie par raie

Cette première classe de modèles correspond à des modèles de référence dans le domaine des transferts radiatifs en milieu gazeux. On suppose connu l'ensemble des raies d'absorption de chacun des gaz du mélange considéré. Cela signifie que l'on a accès avec précision, pour chaque raie, à la fréquence du centre de raie, son intensité et sa forme (par l'intermédiaire de la demi-largeur de raie à mi-hauteur γ dans le cas d'une forme lorentzienne). Le coefficient d'absorption à une fréquence donnée est alors obtenu en sommant à cette fréquence les contributions de chacune des raies. La précision de ce type de modèle dépend alors essentiellement de celle des banques de données spectroscopiques disponibles, ainsi que des éventuelles hypothèses de troncature utilisées lors de la mise en oeuvre. Par exemple, pour un spectre infrarouge de CO_2 et H_2O vers 2500 K, chaque calcul de coefficient d'absorption va demander de sommer les contributions de près de 1000000 raies. Les temps de calcul inhérents à l'emploi d'un modèle raie par raie sont toujours importants et ces modèles restent très difficilement exploitables sur des configurations réelles. Ils servent avant tout de référence pour la validation de modèles paramétriques simplifiés moins coûteux.

3.1.3.2 Modèles simplifiés

Il existe des modèles beaucoup plus légers à mettre en oeuvre, adaptés à certaines applications en fonction de la précision recherchée. Ces modèles simplifiés visent à représenter l'essentiel de la physique spectrale à partir de grandeurs intégrées sur des plages de fréquences. Le gain en facilité d'utilisation qu'on obtient est cependant toujours obtenu au sacrifice de la généralité de leurs conditions d'application. On peut donc retenir que pour tous les modèles qui suivent la confrontation au modèle de référence raie par raie reste une étape incontournable.

- **Modèles globaux :** A l'opposé des modèles raie par raie, les modèles globaux utilisent des propriétés intégrées sur tout le spectre. On peut citer le modèle "somme pondérée de gaz gris" (WSGG) [Hottel... (1967)] qui approche la distribution spectrale continue du coefficient d'absorption par un nombre discret de valeurs pondérées, permettant ainsi de réduire le problème gazeux à une combinaison simple de problèmes de transferts en milieu gris. Une logique similaire préside à des modèles plus récents tels que SLW [Denison (1993), Denison... (1995)], ADF, ADF-FG [Pierrot (1997), Taine... (1998)] qui, appuyés sur des banques de données spectrales de qualité, permettent d'assurer de bonnes précisions de simulation dans bon nombre d'applications industrielles. Ces modèles globaux rencontrent principalement leurs limites pour des systèmes où les propriétés de surface sont dépendantes de la fréquence, ou encore (et c'est le cas de notre étude) en présence de particules absorbantes non grises⁷.

- **Modèles de bande :** La principale difficulté rencontrée par les modèles globaux est celle de la représentation des effets combinés de la déformation du spectre d'absorption du gaz et de la fonction de Planck en fonction de la température. Cette difficulté est contournée en découpant le spectre en intervalles suffisamment étroits pour que l'on puisse négliger les dépendances fréquentielles de la fonction de Planck au sein de chaque bande. C'est le point de départ des modèles de bande qui se distinguent ensuite par le type de représentation proposé pour le spectre de raie du gaz.

Les modèles à bande large (tels que le modèle d'Edwards) proposent des représentations

⁷Certaines difficultés de mise en oeuvre de calcul apparaissent également lorsqu'il s'agit de traiter des mélanges de gaz hétérogènes

de l'ensemble d'une bande de rotation-vibration sur la base d'analyses spectroscopiques quant à la distribution fréquentielle des intensités de raie au sein de la bande. Etant données les largeurs des bandes de rotation-vibration de H_2O et CO_2 qui nous concernent en combustion, nous sommes alors proches des limites de validité de l'hypothèse d'indépendance fréquentielle de la fonction de Planck.

Que ce soit pour cette raison ou d'autres exigences de précisions, il apparait dans la littérature que les modèles à bandes larges se voient souvent préférer des modèles à bande étroite qui quant à eux s'appuient sur un découpage fréquentiel à une échelle nettement inférieure à celle de la bande de rotation-vibration. Ces découpages peuvent aller de 5 à 200 cm^{-1} mais pour des applications en énergétique industrielle un très bon compromis semble avoir été trouvé à 25 cm^{-1} [Soufiani... (1994)]. Nous reprenons ci-dessous en détail la discussion des modèles à bande étroite, mais on peut dores et déjà retenir que l'on peut choisir de distinguer deux familles de modèles à bande étroite, selon qu'ils sont issus directement de données spectroscopiques expérimentales ou théoriques, ou bien qu'ils font au préalable des hypothèses sur la répartition des raies et de leurs intensités. Nous préférons cependant distinguer les modèles par la manière avec laquelle ils sont formulés : en transmittivité moyenne sur une partie du spectre $\langle \tau_\eta \rangle$ ou en distribution de coefficients d'absorption.

3.1.3.3 Modèles à bande étroite : formulation en transmittivité moyenne

Ces modèles proposent pour des milieux homogènes en concentrations et températures une représentation de la transmittivité moyenne sur une bande étroite [Goody (1989)]. Pour une colonne homogène de longueur l on la note :

$$\bar{\tau}(l) = \langle \tau(l) \rangle = \frac{1}{\Delta\eta} \int_{\Delta\eta} d\eta \tau_\eta(l)$$

Pour les applications en combustion [Soufiani... (1985), Soufiani... (1994)] il est courant d'utiliser le modèle de [Malkmus (1967)] qui sera repris en détail au chapitre suivant.

3.1.3.4 Modèle à bande étroite : formulation en k-distributions

Principe des k-distributions : Les modèles en k-distributions proposent une représentation de la distribution du coefficient d'absorption κ_η au sein de la bande de fréquence. C'est

pour éviter la lourdeur liée à la résolution d'un spectre difficile à mettre en équation que G.A. Domoto présente en 1974 [Domoto (1974)] le principe des k-distributions dont le but est d'abandonner la dépendance fréquentielle au profit d'une description statistique du coefficient d'absorption. Exposons le principe des méthodes en k-distribution. Supposons que, pour une quelconque fonction F du coefficient d'absorption on veuille évaluer sur une bande étroite $\Delta\eta$:

$$G = \int_{\Delta\eta} d\eta F(\kappa_\eta) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \simeq \Delta\eta L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \langle F \rangle \quad (3.7)$$

où :

$$\langle F \rangle = \frac{1}{\Delta\eta} \int_{\Delta\eta} d\eta F(\kappa_\eta) \quad (3.8)$$

avec une dépendance fréquentielle du coefficient d'absorption illustrée par la **Fig. 3.4**. Choisissons

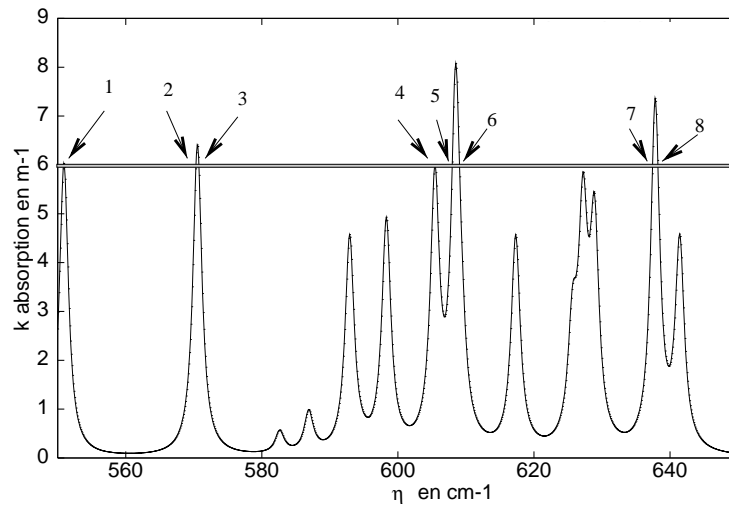


FIG. 3.4 – Spectre d'absorption synthétique obtenu par élargissement de raies prédéfinies de manière discrète

alors un coefficient d'absorption κ symbolisé par la bande grise sur la **Fig. 3.4**. Il est rencontré pour différents nombres d'onde η qui forment un ensemble discret de i valeurs η_i (ici 8) du nombre nombre d'onde η . A chaque κ correspond une fréquence de rencontre, ce qui permet de fabriquer une fonction $f(\kappa)$ représentée à la **Fig. 3.5**. La fonction $f(\kappa)$ ⁸ représente

⁸Les petites irrégularités de la courbe sur la **Fig. 3.5** s'explique par l'échantillonnage en valeur de κ_η sur le spectre **Fig. 3.4**. Les grandes amplitudes proviennent du choix des raies spectrales. D'où l'importance du choix de la largeur de $\Delta\eta$

la distribution des coefficients d'absorption κ_η sur la bande étroite. Elle correspond à la densité de probabilité de trouver une valeur κ de κ_η lorsque l'on parcourt de façon uniforme l'intervalle des nombres d'onde. On l'utilise pour calculer l'intégrale de l'**Eq. 3.8** qui devient :

$$\overline{F} = \langle F \rangle = \frac{1}{\Delta\eta} \int_{\Delta\eta} d\eta F(\kappa_\eta) = \int_{\kappa=0}^{\infty} d\kappa f(\kappa) F(\kappa) \quad (3.9)$$

Lorsque l'on utilise une valeur de κ , on ne peut plus dire à quelle nombre d'onde η elle correspond. Cela n'a pas d'importance, puisque ce qui est recherché, ce n'est pas la fonction mais la valeur de son intégrale. Il est important de remarquer également que la dépendance fréquentielle dans un problème de rayonnement est double au départ : le spectre d'absorption est décliné en fonction de η et la luminance noire (ou fonction de Planck) est soumise à la même dépendance. Cependant l'hypothèse de bande étroite permet de nous libérer de cette deuxième contrainte puisque l'on considère l'intervalle d'étude suffisamment étroit pour prendre $L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)$ indépendant de η et donc la seule dépendance en η est celle des κ_η . L'essentiel dans cette démarche, réside dans la construction de $f(\kappa)$.

Modèles en k-distributions : Il y a deux moyens de parvenir à un modèle en k-distributions. Le premier consiste à partir d'un spectre expérimental détaillé. On découpe la bande étroite $\Delta\eta$ en intervalle i où κ_η est monotone entre deux valeurs extrêmes $\kappa_{min,i}$ et $\kappa_{max,i}$. La densité de probabilité s'écrit alors :

$$f(\kappa) = \sum_{i=1}^N \frac{1}{\Delta\eta} \left| \frac{d\eta_i}{d\kappa} \right| \times \{ h[\kappa - \kappa_{min,i}] - h[\kappa_{max,i} - \kappa] \}$$

où h représente la fonction échelon unité. La deuxième démarche consiste à retenir dans la littérature un modèle de transmittivité. On réécrit alors la transmittivité moyenne sur la bande étroite ($\overline{\tau}(l) = \frac{1}{\Delta\eta} \int \exp(-\kappa_\eta l) d\eta$) en terme de k-distributions, soit : $\overline{\tau}(l) = \int_0^\infty \exp(-\kappa l) f(\kappa) d\kappa$ où l'on voit que $\overline{\tau}$ est une transformée de Laplace de f . Donc en notant L^{-1} la transformée de Laplace inverse, on obtient :

$$f(\kappa) = L^{-1}(\overline{\tau}(l)) \quad (3.10)$$

C'est pourquoi $f(\kappa)$ est appelée aussi fonction de transmittivité inverse. En pratique Domoto propose une telle fonction correspondant au modèle en transmittivité de Malkmus. $f(\kappa)$ a alors des propriétés très particulières d'un point de vue mathématique que nous détaillons.

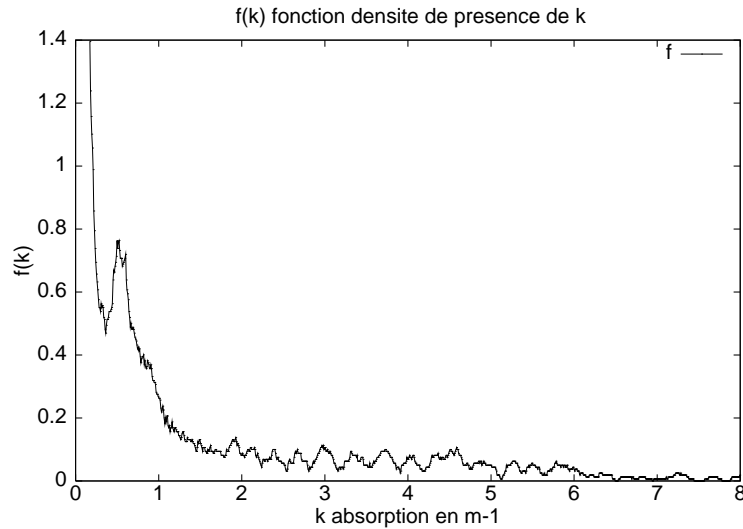


FIG. 3.5 – Fonction $f(\kappa)$ pour le spectre d'absorption synthétique de la Fig. 3.4

3.1.3.5 Questions de corrélations spectrales

Pour clore nos remarques sur les modèles de propriétés radiatives des gaz disons quelques mots sur les avantages et les inconvénients à utiliser un modèle à bandes étroites formulé en transmittivité moyenne ou en distribution de coefficients d'absorption. En effet, le choix d'un modèle de propriétés radiatives implique parfois, le choix implicite d'un modèle de transfert radiatif. Les modèles de propriétés en κ sont compatibles avec toutes les formes (différentielle et intégrale) de l'ETR. En revanche, les modèles de propriétés en $\bar{\tau}$ nécessitent de pouvoir justifier les décorrélation spectrales. Il n'y a pas à notre connaissance de solution pleinement satisfaisante pour l'utilisation de $\bar{\tau}$ en combinaison avec la forme différentielle de l'ETR⁹. En ce qui concerne la forme intégrale les corrélations spectrales ne posent de problèmes qu'au niveau des conditions aux limites, ce qui fait qu'en pratique on ne rencontre aucune difficulté dans le cas de configurations à parois noires. Pour des configurations réfléchissantes, [Pierrot (1997)] a montré que l'hypothèse de décorrélation spectrale peut entraîner des erreurs importantes ($\sim 30\%$) sur les calculs de flux radiatifs. Ce problème disparaît si dans la formulation intégrale, on explicite les conditions aux limites sous la forme d'une combinaison d'intégrales multiples représentant l'ensemble des multi-réflexions [Dutre (1996)].

⁹Pour laquelle le problème de corrélation spectrale se pose en tout point

	Régime de Rayleigh	Régime de Mie	Optique géométrique
paramètre de taille $x_p = \frac{\pi D}{\lambda}$	$x_p \leq 0.3$	$0.3 \leq x_p \leq 5$	$5 \leq x_p$
énergies mises en jeu	$E_{diffusee} \ll E_{transmise}$	-	-

TAB. 3.1 – Les régimes de diffusion en fonction du paramètre de taille

3.1.3.6 Questions d'hétérogénéités

Pour une seule espèce gazeuse¹⁰ participante, nous venons de présenter les modèles de bande qui permettent de décrire son spectre radiatif pour un milieu homogène en température et concentration. Le problème est maintenant de pouvoir tenir compte de la déformation de ce spectre lorsque parcourant l'espace, les conditions en température, pression et concentrations évoluent. Les modèles de bande décrits au-dessus font l'hypothèse d'un milieu aux propriétés radiatives homogènes. Sans approfondir ici cet aspect que nous détaillerons par la suite, on peut mentionner que les solutions utilisées pour traiter les configurations hétérogènes sont principalement d'une part l'approximation de Curtis-Godson pour les modèles à bandes étroites en transmittivité moyenne et d'autre part la méthode ck (ou ckfg) [Goody (1989), Taine... (1998)] pour les modèles à bandes étroites formulés en k-distributions.

3.1.4 Propriétés spectrales des particules de suies

C'est à partir de la théorie électromagnétique que l'on aborde de manière efficace la modélisation de l'absorption et la diffusion du rayonnement par les particules. Dans le cas d'une particule sphérique, on fait appel dans ces théories à un paramètre de taille qui est proportionnel au rapport entre la dimension de l'objet et la longueur d'onde de l'éclairement :

$$x_p = \frac{\pi D}{\lambda}$$

Aux faibles x_p , on utilise l'approximation de Rayleigh (sachant que les centres diffuseurs sont petits et donc que l'énergie diffusée est faible). Aux forts x_p , on se retrouve dans le domaine de l'optique géométrique, sans diffraction. Le régime de Mie est le cas général intermédiaire (**Tab. 3.1**). Pour les suies, la complexité du problème physique est accrue du

¹⁰On abordera les mélanges au Chap. 4

fait que les particules quasi-sphériques élémentaires (par exemple, $30nm$) s'agrègent pour donner des ensembles qui peuvent comprendre jusqu'à 10000 particules élémentaires (taille totale de l'ordre du micron). Les théories disponibles actuellement font alors l'hypothèse d'une structure fractale dans les développements électromagnétiques des propriétés radiatives pour aboutir aux sections efficaces d'absorption et de diffusion ainsi qu'à la fonction de phase de diffusion [Farias (1997)].

En pratique, principalement du fait de la complexité de cet ensemble théorique, les études de combustion font en général de très fortes simplifications, en particulier :

- Du fait de la petite taille caractéristique des agrégats de suie devant les longueurs d'onde du rayonnement infrarouge, les effets diffusifs sont négligés.
- Des corrélations simples sont employées pour modéliser la dépendance spectrale du coefficient d'absorption. En particulier, nous ferons appel dans ce travail à la corrélation suivante proposée par [Dalzell... (1969), Lee... (1981)] :

$$\kappa_{\eta_{suie}} = 5,5\eta f_v \quad (3.11)$$

Un travail mené au laboratoire [Eymet (2000)] nous a permis de tester les incertitudes associées à ce type d'approximations et il apparaît que pour les configurations qui nous concernent celles-ci sont au maximum de quelques pour cent sur le terme source radiatif volumique. De ce point de vue, les conditions les plus critiques semblent devoir se rencontrer à hautes fréquences (à proximité de la plage visible) et pour des systèmes en combustion de grandes tailles (dimension supérieure au mètre).

3.2 Formulations des Transferts radiatifs et méthodes numériques associées

Avec les rappels précédents, nous avons cherché à faire le point sur ce que sont les éléments de départ des modélisations radiatives actuelles dans le domaine de la combustion. On peut retenir globalement qu'après de gros travaux sur les données spectroscopiques, l'état actuel des connaissances est tel que dans la plupart des cas, la précision des estimations radiatives est principalement définie par les limites de la procédure de résolution numérique employée pour résoudre le modèle de transfert.

En général, ces limites se déclinent en termes de compromis entre finesse et temps de calcul. Cette recherche de compromis est d'autant plus sensible en combustion que :

- du fait des questions de cinétique chimique, les questions de précision sont cruciales
- nous sommes confrontés à des complexités spectrales et géométriques souvent assez considérables
- les besoins de couplage avec la combustion demandent de pouvoir gérer des schémas numériques itératifs avec des appels répétés à la procédure de calcul radiatif.

Le choix d'un modèle de transfert détermine de manière forte la qualité des résultats et notre possibilité d'analyse à leur égard. Cela nous conduit à développer un travail d'approfondissement des démarches de formulation des processus de transfert. Nous avons déjà introduit les formes différentielles et intégrales de l'équation de transfert radiatif et nous les reprenons ici pour pousser plus avant l'analyse et aboutir à une présentation sommaire des grandes familles de méthodes numériques actuelles.

Nous considérons pour cela un système \mathcal{S} Fig. 3.6 dont on connaît sur la frontière la valeur de la luminance dans toutes les directions rentrantes¹¹ et pour toutes les fréquences $L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega)$. On note S la surface totale qui entoure le volume total V .

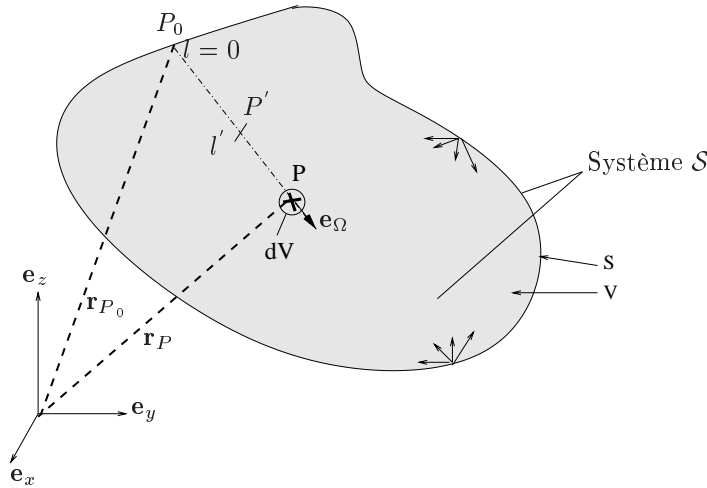


FIG. 3.6 – Calcul du terme source en un point P

¹¹Directement comme condition aux limites explicites au travers de conditions de réflexion ou encore comme condition de raccord avec un système extérieur

3.2.1 Formulation différentielle

Nous cherchons tout d'abord à écrire, en un point P repéré par le vecteur \mathbf{r}_P , le terme source radiatif $s_r(\mathbf{r}_P)$.

Dans les développements suivants, le vecteur unitaire \mathbf{e}_Ω porte la direction du rayon lumineux sur lequel l désigne l'abscisse curviligne, qui prend son origine en \mathbf{r}_{P_0} . On a alors les relations suivantes : $\mathbf{e}_\Omega \cdot \nabla = \mathbf{e}_\Omega \cdot \partial_{\mathbf{r}_P} = \frac{\partial}{\partial l}$

$$\begin{aligned}
 s_r(\mathbf{r}_P) &= -\text{div}(\mathbf{q}_r) \\
 &= \int_0^\infty d\eta \underbrace{(-\nabla \mathbf{q}_{r,\eta})}_{\text{formulation différentielle}} \\
 &= - \int_0^\infty d\eta \nabla \int_{4\pi} d\Omega \mathbf{e}_\Omega L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \\
 &= - \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \mathbf{e}_\Omega \cdot \nabla L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \\
 &= - \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \frac{\partial L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)}{\partial l} \\
 &= - \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \underbrace{\frac{\partial L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)}{\partial l}}_{\text{formulation différentielle}}
 \end{aligned} \tag{3.12}$$

On a besoin dans cette expression pour exprimer la dérivée partielle de la luminance le long du chemin optique de la connaissance du champ de luminance. Cette formulation n'est donc pas autonome mais peut s'accompagner de la résolution de l'ETR sous sa forme différentielle (Eq. 3.5). Nous appellerons "méthodes différentielles" les méthodes numériques correspondant à cette approche, c'est à dire résolvant le champ de luminance à partir de l'ETR sous forme différentielle et construisant le terme source radiatif par intégration angulaire. Dans cette famille, les différentes méthodes numériques se distinguent principalement par la façon de représenter la dépendance angulaire de la luminance. Nous n'approfondirons pas les détails de ces méthodes car ce n'est pas sur cette voie que nous poursuivrons. Elles sont bien documentées dans de nombreux ouvrages [Modest (1993), Siegel... (1992)] et nous nous contenterons ici de mentionner les grandes lignes de leurs bases théoriques.

En schématisant, on peut retenir que les méthodes différentielles peuvent se ranger en trois classes selon que :

- la dépendance angulaire de la luminance est abordée par discrétisation de la sphère unité [Liu (1999)] (Méthode des Ordonnées Discrètes ou Méthode Sn) ;

- la fonction luminance en chaque point est décomposée sur une base angulaire, par exemple une base d'harmoniques sphériques (Méthode des Harmoniques Sphériques ou Méthode Pn [Languénou... (1994)]);
- l'ETR est transformée par intégration angulaire de la luminance de façon à produire un jeu d'équations différentielles sur des grandeurs intégrées (Méthode des Flux).

Du fait de leur gestion des aspects angulaires, ces méthodes sont souvent retenues pour la résolution de problèmes radiatifs avec diffusion. Nous rappelons qu'elles sont utilisables sans difficulté avec un modèle spectral en k-distribution, mais qu'elles sont d'un emploi délicat avec un modèle spectral en transmittivité moyenne (problèmes de corrélations spectrales).

3.2.2 Formulations intégrales

Pour les développements qui suivent nous avons décidé de passer sous silence les questions liées aux réflexions aux parois et aux diffusions en volume. Non qu'elles soient insurmontables à traiter, mais elles rajoutent des lourdeurs aux développements mathématiques que nous avons souhaité ne pas introduire, d'une part pour ne pas perdre le lecteur et d'autre part parce qu'elles ne constituent pas un point fondamental de notre étude. En effet, bien que dans le cas général la réflexion et la diffusion soient des éléments fondamentaux dont dépend grandement la convergence des schémas numériques, comme nous l'avons déjà exprimé, elles jouent un rôle secondaire dans les flammes à contre-courant sur lesquelles nous nous concentrons. Cette observation n'est cependant pas valable pour l'ensemble des problèmes de combustion et, par conséquent, pour permettre au lecteur qui le souhaiterait d'approfondir cette question, nous prendrons soin d'attirer son attention sur les possibilités d'extension vers ces deux phénomènes dès que cela pourrait s'avérer nécessaire¹².

L'**Eq.** 3.12 peut-être reprise pour aboutir à une forme intégrale autonome. Pour cela, on remplace d'abord la dérivée partielle de la luminance par son expression de l'**Eq.** 3.5, puis

¹²La démarche que nous proposons par la suite s'inscrit dans une logique équivalente à celles de [Fournier (1994), Cherkaoui... (1998)] qui pour l'analyse de problème de convection naturelle ont été pratiquement confrontés aux questions de réflexions multiples. On pourra donc trouver dans ces deux références l'ensemble des éléments nécessaires à l'extension de notre travail aux systèmes à parois réfléchissantes

la luminance par son expression de l'**Eq. 3.6**.

$$\begin{aligned}
s_r(\mathbf{r}_P) &= - \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \partial_l L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \\
&= - \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \mathbf{e}_\Omega \cdot \partial_{\mathbf{r}_P} L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega) \\
&= \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \underbrace{L_\eta(\mathbf{r}_P, \mathbf{e}_\Omega)}_{\text{formulation intégrale}} - (\kappa_\eta(\mathbf{r}_P) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)) \\
&= \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega (L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P)) \\
&\quad + \left(\int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P'}) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P'} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \right) - (\kappa_\eta(\mathbf{r}_P) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P))
\end{aligned} \tag{3.13}$$

Si l'on regarde formellement le terme source radiatif volumique comme le rapport d'un élément différentiel de puissance dS_r et d'un élément différentiel de volume dV soit $s_r = \frac{dS_r}{dV}$, alors on peut noter que la dernière égalité se compose de trois termes : le flux provenant de la frontière et absorbé dans le volume dV , le flux issu des volumes intermédiaires et absorbé en dV , puis le terme d'émission du volume dV . Il est donc possible, à partir de cette écriture, pour d'éventuels besoins d'analyse, de distinguer les contributions des frontières et des volumes.

D'un point de vue numérique, la question se pose à ce stade en termes de techniques de résolutions d'intégrales multiples, avec principalement l'alternative entre les méthodes déterministes (discrétisation ou décomposition de chacune des dimensions du problème) et les méthodes statistiques. Dans la première classe nous pouvons mentionner les méthodes par lancer de rayon (discrétisation de la sphère unité et intégration le long chaque rayon depuis P jusqu'à la paroi) et dans la seconde classe les méthodes de Monte Carlo sur lesquelles nous reviendrons à la fin de ce paragraphe.

Nous verrons au chapitre suivant que nos choix méthodologiques nous conduisent à travailler sur la base d'une formulation intégrale avec une résolution numérique de type statistique. Cependant, par rapport à ce qui vient d'être dit, nous poussons plus avant les travaux d'écriture, d'une part en réarrangeant l'**Eq. 3.13** de façon à faire apparaître de façon explicite le principe de réciprocité des rayons lumineux, d'autre part en utilisant un découpage en zones conduisant à une formulation en puissances nettes échangées. Nous détaillons donc ces deux étapes supplémentaires pour finir par une description sommaire de la méthode de

Monte Carlo telle que nous la manipulerons par la suite.

3.2.2.1 Inclusion du principe de réciprocité

L'établissement de l'**Eq. 3.13** s'articule autour d'un bilan énergétique sur un volume élémentaire centré en un point P . Il y a en rayonnement un principe, qui est celui de la réciprocité des rayons lumineux. [Hottel... (1967), Green (1967), Cherkaoui... (1996), Dufresne... (1998), Dufresne... (1999), Tessé... (2000b)] ont montré l'intérêt d'inclure cette idée explicitement dans la formulation. Il est clair qu'il faut pour cela correctement identifier les chemins optiques et leurs positions extrêmes comme lieux d'échange. La formulation intégrale, par ses contributions distinctes est donc appropriée.

Nous repartons donc de l'**Eq. 3.13** :

$$s_r(\mathbf{r}_P) = \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \quad (L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P)) \\ + \left(\int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega \quad \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P'}) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) \quad \tau_\eta(\mathbf{r}_{P'} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \right) - (\kappa_\eta(\mathbf{r}_P) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P))$$

Suivant la démonstration issue de [Fournier (1994)], on écrit l'**Eq. 3.13** (valable dans le cas générale) pour le cas où l'on plonge notre système \mathcal{S} dans une cavité isotherme. Dans chaque direction et en tout point, donc aux frontières également, la luminance devient la luminance noire. Le bilan radiatif volumique local est nul.

$$0 = \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \\ (L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P)) \\ + \left(\int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega \quad \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P'}) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) \quad \tau_\eta(\mathbf{r}_{P'} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \right) - (\kappa_\eta(\mathbf{r}_P) L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)) \quad (3.14)$$

En retranchant à l'**Eq. 3.13**, l'**Eq. 3.14**, on obtient l'expression du terme source ponctuel $s_r(\mathbf{r}_P)$ décomposé selon les échanges deux à deux que le point P a :

- avec le points P' qui est le point courant sur l'ensemble du volume (**Fig. 3.6**)
- avec le point P_0 qui est le point courant sur l'ensemble des surfaces (**Fig. 3.6**)

d'où :

$$\begin{aligned}
s_r(\mathbf{r}_P) &= \int_0^\infty d\eta \int_{4\pi} d\Omega \\
&\left[L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \\
&+ \left(\int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega \quad \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P'}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P'} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \right)
\end{aligned} \tag{3.15}$$

Pour la suite, et dans le but de simplifier notre présentation on supposera que les frontières sont des surfaces noires ce qui permet de remplacer les conditions aux limites $L_\eta(\mathbf{r}_{P_0}, \mathbf{e}_\Omega)$ par $L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_0})$. Ce qui donne :

$$\begin{aligned}
s_r(\mathbf{r}_P) &= \int_0^\infty d\eta \left\{ \right. \\
&\int_{4\pi} d\Omega \left(\int_{\mathbf{r}_{P_0}}^{\mathbf{r}_P} d\mathbf{r}_{P'} \cdot \mathbf{e}_\Omega \quad \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P'}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P'}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P'} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \right) \\
&\left. + \int_{4\pi} d\Omega \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_0}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_0} \rightarrow \mathbf{r}_P) \kappa_\eta(\mathbf{r}_P) \right\}
\end{aligned} \tag{3.16}$$

Dans cette écriture, les points courants (P' pour le volume, P_0 pour la paroi) sont identifiés à partir de l'intégration angulaire et pour P' , de l'intégration linéique le long du rayon. Par la suite, nous préférons identifier directement ce point courant par intégration sur le volume et la surface. Pour aider les développements ultérieurs, nous changeons ici de notation avec d'une part P_j comme notation générique pour le point d'échange courant P' ou P_0 et d'autre part P_i pour le point d'étude P . On effectue alors un changement de variables sur l'élément de mesure $d\Omega$. Si on note \mathbf{e}_n la normale à l'élément de surface dS et $l_{ij} = |\mathbf{r}_{P_j} - \mathbf{r}_{P_i}|$ la distance entre les points P_i et P_j , il y a deux expressions pour $d\Omega$ selon que le point P_i échange avec un élément de volume dV centré sur le point P_j courant, ou un élément de surface dS centré sur le point P_j courant :

- pour un volume : $d\Omega dl = \frac{1}{l_{ij}^2} dV$
- pour une surface : $d\Omega = \frac{\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n}{l_{ij}^2} dS$

On peut alors réécrire, l'**Eq.** 3.16 sous la forme :

$$\begin{aligned}
s_r(\mathbf{r}_{P_i}) &= \int_0^\infty d\eta \left\{ \right. \\
&\quad \int_V dV(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{1}{l_{ij}^2} \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_j}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_j} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \\
&\quad \left. + \int_S dS(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n}{l_{ij}^2} \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_j} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \right\}
\end{aligned} \tag{3.17}$$

En notant les densités d'échanges radiatifs nets entre deux points P_i et P_j par

$$\begin{aligned}
\varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, volume} &= \frac{1}{l_{ij}^2} \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_j}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_j} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \\
\varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, surface} &= \frac{\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n}{l_{ij}^2} \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_j} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i})
\end{aligned} \tag{3.18}$$

on peut réécrire l'**Eq.** 3.17 sous la forme :

$$\begin{aligned}
s_r(\mathbf{r}_{P_i}) &= \int_0^\infty d\eta \left\{ \right. \\
&\quad \int_V dV(\mathbf{r}_{P_j}) \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, volume} \\
&\quad \left. + \int_S dS(\mathbf{r}_{P_j}) \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, surface} \right\}
\end{aligned} \tag{3.19}$$

3.2.2.2 Formulation en puissances nettes échangées

Dans l'**Eq.** 3.19, on se place au point P_i et on évalue d'abord les densités d'échanges radiatifs nets avec un point P_j . On fait ensuite courir continûment le point P_j sur l'ensemble du volume V et de la surface S qui constituent notre système \mathcal{S} . Il s'agit bien ici d'une formulation "ponctuelle" du terme source : c'est ce que nous appelons une écriture forte. Il arrive cependant que l'on veuille regrouper les points de manière naturelle, parce qu'ils correspondent à des sous-surfaces ou à des sous-volumes dont on veut analyser séparément les contributions radiatives. Que ce soit ainsi pour un besoin d'analyse ou pour des raisons

numériques de couplage avec d'autres phénomènes physiques on procède la plupart du temps à un découpage en zones. Imaginons qu'on veuille calculer le terme source radiatif $S_r(V_i)$ d'un

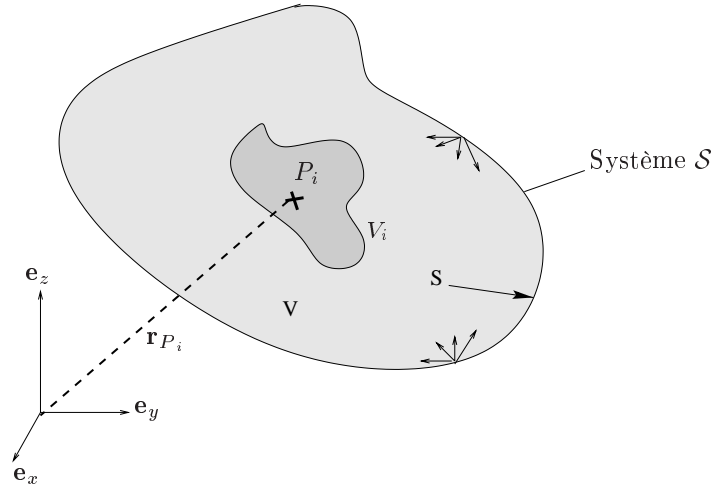


FIG. 3.7 – Calcul du terme source d'un volume V_i

volume V_i qui contient un point courant P_i repéré par le vecteur position \mathbf{r}_{P_i} (**Fig. 3.7**). On intègre alors l'**Eq. 3.19** sur le volume V_i :

$$\begin{aligned}
 S_r(V_i) &= \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \quad s_r(\mathbf{r}_{P_i}) \\
 &= \int_0^\infty d\eta \left[\int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_V dV(\mathbf{r}_{P_j}) \quad \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, volume} \right. \\
 &\quad \left. + \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_S dS(\mathbf{r}_{P_j}) \quad \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, surface} \right]
 \end{aligned} \tag{3.20}$$

Si nous poursuivons notre raisonnement en découpant le volume V en n_V volumes (dont V_i est un représentant) et la surface S en n_S surfaces, l'**Eq. 3.20** devient :

$$\begin{aligned}
 S_r(V_i) &= \sum_{j=1}^{n_V} \int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{V_j} dV(\mathbf{r}_{P_j}) \quad \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, volume} \\
 &\quad + \sum_{j=1}^{n_S} \int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{S_j} dS(\mathbf{r}_{P_j}) \quad \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, surface}
 \end{aligned} \tag{3.21}$$

En notant les échanges radiatifs nets entre éléments (volumes ou surfaces) :

$$\begin{aligned}\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} &= \int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{V_j} dV(\mathbf{r}_{P_j}) \quad \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, volume} \\ \varphi_{V_i \leftrightarrow S_j} &= \int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{S_j} dS(\mathbf{r}_{P_j}) \quad \varphi_{P_i, volume \leftrightarrow P_j, surface}\end{aligned}\quad (3.22)$$

On obtient :

$$S_r(V_i) = \sum_{j=1}^{n_V} \varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} + \sum_{j=1}^{n_S} \varphi_{V_i \leftrightarrow S_j} \quad (3.23)$$

C'est la troisième et dernière formulation intégrale que nous voulions présenter concernant le calcul d'un terme source radiatif. Pour la résumer, c'est une évaluation du terme source radiatif par une écriture faible par échange de l'ETR sous forme intégrale. Cette formulation sera appelée par la suite formulation en Puissances Nettes Echangées (PNE). Elle s'identifie aux formulations proposées par les travaux de Hottel (même si sa généralité et sa symétrie sont abandonnées lors du passage à la méthode des zones) [Osuwan (1972), Edwards... (1972), Tucker... (1984), Viskanta... (1987), Walters... (1992), Olsommer... (1997b)] et de Green [Green (1967)] (dans le domaine des Sciences de l'atmosphère).

Remarque : Dans le cas de volumes et de surfaces isothermes (hypothèse que nous retenons pas par la suite) nous pouvons revenir aux notations de Hottel en utilisant le fait que la luminance noire devient alors indépendante de la position dans chaque zone. Ce qui conduit à :

$$\begin{aligned}\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} &= \left(\int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{V_j} dV(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{1}{l_{ij}^2} \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_j}) \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_j} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \right) \left[L_{b,\eta}(V_j) - L_{b,\eta}(V_i) \right] \\ \varphi_{V_i \leftrightarrow S_j} &= \left(\int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{S_j} dS(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n}{l_{ij}^2} \tau_\eta(\mathbf{r}_{P_j} \rightarrow \mathbf{r}_{P_i}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \right) \left[L_{b,\eta}(S_j) - L_{b,\eta}(V_i) \right]\end{aligned}\quad (3.24)$$

Ce qui en général est noté :

$$\begin{aligned}\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} &= \mathcal{V}\mathcal{V}_{ij} \left[L_{b,\eta}(V_j) - L_{b,\eta}(V_i) \right] \\ \varphi_{V_i \leftrightarrow S_j} &= \mathcal{V}\mathcal{S}_{ij} \left[L_{b,\eta}(S_j) - L_{b,\eta}(V_i) \right]\end{aligned}\tag{3.25}$$

où les coefficients optico-géométriques $\mathcal{V}\mathcal{V}_{ij}$ et $\mathcal{V}\mathcal{S}_{ij}$ sont les surfaces d'échange de Hottel.

3.2.2.3 Méthode de Monte Carlo

Pour résoudre numériquement des intégrales, on peut faire appel à des techniques standards (méthode des trapèzes...) ou à des méthodes stochastiques. Lorsque le problème posé est formulé en termes d'intégrales multiples, la complexité des méthodes standards croît proportionnellement à la puissance du nombre d'intégrales qui se succèdent. En revanche, les techniques stochastiques permettent de reconstruire simultanément l'ensemble des intégrales. C'est alors l'intégrale la plus complexe qui fixe le degrés de précision du calcul. C'est à nos yeux une raison suffisante pour porter une attention particulière aux méthodes stochastiques.

La méthode de Monte Carlo est une méthode statistique qui représente une classe à part parmi les méthodes numériques utilisées en rayonnement parce qu'elle reste étroitement liée aux processus physiques aléatoires sous-jacents. Les débuts de la méthode de Monte-Carlo remontent aux années 1940. Elle a pour principe de reconstituer statistiquement un résultat par la réalisation d'un grand nombre d'événements aléatoires [Hammersley... (1967), Halton (1970), MacKeown (1997), Dutre (1995)]. En ce qui nous concerne, la méthode de Monte Carlo supporte deux points de vue distincts, mais fortement complémentaires :

- Une fois posé un modèle stochastique de transfert énergétique sur la base d'images de transport corpusculaire, il s'agit simplement de reproduire un grand nombre de fois les événements aléatoires correspondants et de décompter les redistributions énergétiques résultantes. Au premier niveau de modélisation on trouve ainsi l'image originelle de la méthode de Monte Carlo en rayonnement avec l'émission aléatoire d'un grand nombre de photons suivis dans leur marche aléatoire au sein du système jusqu'à absorption. Dans cette logique, les travaux de formulation intégrale présentés au § précédent n'ap-

paraissent pas comme essentiels¹³.

- Au contraire, une autre approche consiste à se restreindre au développement de formulations intégrales adéquates et ne regarder la méthode de Monte Carlo que comme une méthode de résolution d'intégrales multiples. La dimension statistique ne se voit alors associer aucune image physique a priori et la “liberté” résultante permet de bénéficier de l'ensemble des techniques d'optimisation existantes [Dutre (1996)].

Après quelques pratiques, on constate rapidement que c'est dans la combinaison de ces deux points de vue que réside l'essentiel du savoir-faire nécessaire pour celui qui recherche à optimiser cette méthode. Nous consacrons le Chap. 5 aux détails de la logique à laquelle nous avons abouti dans notre contexte de combustion, avec l'espoir que le lecteur percevant la démarche sera en mesure de pousser plus loin l'optimisation en fonction des caractéristiques de son contexte d'étude.

Après avoir ainsi insisté sur la nature physique de la méthode de Monte Carlo nous poursuivons par une présentation strictement mathématique. Cette méthode représente le moyen numérique d'accéder à la solution exacte, pour autant qu'on fasse un nombre infini de tirages aléatoires, d'un système d'équations. Pour calculer l'intégrale d'une fonction f par N réalisations aléatoires de sa valeur $f(x_i)$ selon la loi de probabilité arbitraire $p(x)$, définie positive, on doit satisfaire à :

$$\int_D dx f(x) = \int_D dx p(x) \frac{f(x)}{p(x)} \equiv \left\langle \frac{f(x)}{p(x)} \right\rangle_D \pm \sqrt{\frac{\left\langle \left(\frac{f(x)}{p(x)} \right)^2 \right\rangle_D - \left\langle \frac{f(x)}{p(x)} \right\rangle_D^2}{N}}$$

avec :

$$\left\langle \frac{f(x)}{p(x)} \right\rangle_D = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{f(x_i)}{p(x_i)} \quad \left\langle \left(\frac{f(x)}{p(x)} \right)^2 \right\rangle_D = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{f(x_i)}{p(x_i)} \right)^2$$

On peut de la même manière aisément calculer l'intégrale de la dérivée de la fonction $f(x)$. C'est par ce moyen que l'on peut calculer sans coûts supplémentaires des sensibilités :

$$\partial_y \int_D dx f(x; y) \cong \left\langle \partial_y \frac{f(x; y)}{p(x)} \right\rangle_D \simeq \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\partial_y \frac{f(x; y)}{p(x)} \right)_{x=x_i}$$

La procédure de tirage aléatoire de la valeur v d'une variable aléatoire X selon la densité de

¹³C'est bien un argument de ce type qui nous permet de mentionner avec confiance les possibilités d'extension de notre méthodologie aux systèmes réfléchissants et diffusants, ceci malgré la lourdeur que représente l'extension, de notre édifice formel à ces deux physiques délicates

probabilité $P(X)$ se fait en général en utilisant la fonction de répartition de P :

$$R(x) = \int_0^x dx' P(x')$$

Le “théorème de la limite centrale” démontre que les valeurs de $R(x)$ sont uniformément réparties sur l’intervalle $[0,1]$. C’est en utilisant la fonction réciproque $X = R^{-1}[0, 1]$ que l’on remonte aux valeurs v de X . La recherche de densités de probabilité, minimisant la variance statistique est au coeur des enjeux pour l’utilisation efficace de la méthode de Monte-Carlo.

En transfert radiatif on peut utiliser la méthode de Monte Carlo avec de très nombreuses variantes [Thynell (1998)]. En particulier, lorsqu’il s’agit de tenir compte du principe de réciprocité on pourra consulter [Cherkaoui... (1996), Dufresne... (1998), Tessé... (2000b)].

3.3 Eléments bibliographiques

Parmi l’ensemble de la littérature du rayonnement en combustion, nous resserrons le domaine avec une présentation de quelques travaux visant à un couplage précis entre un modèle de cinétique chimique et un modèle de rayonnement détaillés au sens où nous l’entendons dans ce document.

En particulier, pour ce qui est des problèmes spectraux, nous avons deux exigences qui ressortent de notre analyse précédente :

- Traiter les propriétés spectrales à partir de modèles spectraux de qualité : c’est-à-dire au moins un modèle de bandes.
- Calculer les termes d’émission, mais aussi les effets de réabsorption du rayonnement, ce qui revient à traiter correctement les problèmes de corrélation spectrales entre le spectre du rayonnement et le spectre des propriétés radiatives du milieu qu’il traverse.

Voici donc des exemples de couplages entre combustion et rayonnement détaillé que nous avons sélectionnés parce qu’ils sont proches des critères qui sont les nôtres.

La majorité des exemples que nous avons trouvés, ne tiennent pas compte d’effets temporels et proposent un couplage stationnaire. Rares sont les mentions faites concernant les écarts de ces méthodes à une solution de référence.

C’est par une étude de [Negrelli... (1977)] que nous commençons à voir l’introduction

de modèles de bande. Il ne s'agit là encore, que d'un modèle de bande large mais une attention particulière est portée sur les effets d'absorption et d'hétérogénéité. C'est une flamme de diffusion de méthane mais avec une chimie à une réaction et sans modèle de suie. La méthodologie de couplage est assez standard : le modèle de combustion converge vers un profil de température puis, ce dernier est fourni au modèle radiatif qui doit calculer les termes sources. Une fois terminée cette estimation, les termes sources sont réintroduits dans le modèle de combustion et le processus peut continuer. Le critère d'arrêt a été fixé sur un écart de la température inférieur à 0,1 K entre deux processus.

Il faut ensuite parler de l'excellent travail de [Hall (1994)]. Pour un mélange gaz/suies en géométrie plan parallèle il propose un ensemble couplé : rayonnement/combustion. Les propriétés radiatives s'appuient là aussi sur un modèle de bandes larges, mais nous sommes à forte pression, ce qui se justifie d'autant mieux. Il tient compte de l'absorption du rayonnement, mais les hétérogénéités sont grossièrement traitées en prenant des valeurs moyennes pour la température et les fractions molaires le long d'un chemin optique. Ce modèle a l'avantage de traiter une chimie complexe, mais la suie y est introduite de manière artificielle par une constante, empêchant tout couplage entre sa formation et le rayonnement. L'auteur qualifie la procédure de couplage d'assez lourde, de sorte qu'il limite le transfert radiatif aux principales bandes d'absorption.

Puis la même année, nous trouvons les travaux de [Sivathanu... (1994)] sur une flamme d'acétylène à géométrie cylindrique. L'auteur néglige une discussion sur les aspects spectraux et l'hétérogénéité, cependant il traite la réabsorption avec l'avantage d'utiliser une chimie détaillée des gaz et un modèle de suie intéressant à 4 étapes. Le couplage se fait ici de la même manière que dans l'article de [Negrelli... (1977)]. Le critère d'arrêt est fixé à une variation inférieure à 2% sur les termes sources radiatifs.

Ensuite, viennent des travaux qui commencent à produire des résultats avec des modèles de propriétés radiatives découpées en bandes étroites. Commençons par [Dagusé (1996)]. Il utilise un modèle ck, en tenant compte de la réabsorption du rayonnement et de l'hétérogénéité par la méthode de Curtis-Godson. C'est une flamme à chimie complexe, sans modèle de suie, pour laquelle la procédure de couplage est plus élaborée que dans les exemples précédents. Un maillage différent est utilisé pour le radiatif et pour la combustion. Une fois le calcul effectué sur le maillage radiatif, il est introduit dans le code de combustion. Le

couplage prend beaucoup de temps, et la réactualisation des termes sources radiatifs ne se fait que sous les critères suivants :

- la température a varié de plus de 20K
- ou les fractions molaires de plus de 10%.

A cela vient s'ajouter la possibilité très importante de converger rapidement pour les premières itérations numériques en utilisant un modèle radiatif simplifié, type modèle mince.

La même année, [Garcia... (1996)] propose pour une flamme à jets opposés de méthane une étude sur la limite d'extinction à faible taux d'étirement. C'est un modèle à bande large qui est utilisé. L'absorption est prise en compte mais le traitement des hétérogénéités a les mêmes limites que celui de [Hall (1994)]. La chimie est complexe mais sans suies.

L'année suivante, [Sivathanu... (1997)] propose des améliorations à son modèle pour une flamme cylindrique de méthane. Le terme d'émission radiatif est calculé par le code RADCAL [Grosshandler (1993)] qui tient compte d'un découpage du spectre en bandes étroites. En revanche, le terme d'absorption ne tient pas compte des rayons provenant de régions éloignées, une procédure dont les effets sur la précision sont difficiles à évaluer.

Enfin, le travail de [Hall... (1997)] pour une flamme à jets opposés propose des résultats basés sur un modèle de bandes mais sous l'hypothèse d'un milieu optiquement mince. L'avantage de ce travail est cependant de proposer un modèle de chimie détaillée à la fois pour les gaz et pour les suies.

Ce n'est enfin que tout récemment que des travaux apparaissent qui permettent d'ouvrir vers le traitement de géométries réelles. Il s'agit de travaux faisant appel à la méthode de Monte Carlo avec un modèle radiatif à bandes étroites de type ck. Ces études de couplage entre radiatif détaillé et cinétiques complexes de gaz et de suies pour une flamme turbulente sont menés par [Tessé... (2000a)].

Chapitre 4

Choix méthodologiques pour le développement d'un modèle radiatif de référence, sa réduction et son couplage avec la combustion

Ce chapitre de transition va, sur la base de la synthèse précédente, nous servir à énoncer l'ensemble de nos choix méthodologiques. La combinaison de ces choix ne va pas faire partie de celles qui sont couramment adoptées en combustion pour modéliser les transferts radiatifs. La question posée est celle de la simulation précise des transferts radiatifs infrarouges au sein d'un mélange gaz-suie hétérogène et dans ce cadre nous discuterons successivement nos choix de formulation, de représentations des propriétés spectrales des suies, de celles des gaz, et enfin notre sélection d'une méthode de résolution numérique et d'une démarche de couplage avec la combustion.

4.1 Formulation des transferts

4.1.1 Formulation intégrale

Nous avons vu à quel point le choix d'une formulation de l'équation de transfert radiatif est déterminant. Elle impose des contraintes quant aux modèles spectraux utilisés (problèmes de corrélations spectrales) et elle définit un ensemble de solutions numériques possibles. Mais avant tout la formulation fixe des lignes d'analyse pour la compréhension aussi bien des transferts radiatifs que de leurs couplages avec la combustion.

C'est principalement ce dernier aspect qui motive ici notre choix d'une méthode intégrale. Nous tenons à développer un outil d'analyse qui puisse être utilisé pour un domaine assez large de configurations de combustion pour des échelles spatiales et des compositions très variables. Au stade actuel de la compréhension des mécanismes de couplage entre combustion et rayonnement, il est fondamental, pour chaque nouvelle famille de configurations, de pouvoir accompagner les simulations radiatives d'une phase d'analyse détaillée des mécanismes d'échanges. Cette analyse est particulièrement délicate en présence de spectres de raies et, lorsque nous choisissons une formulation intégrale, c'est en pensant à une formulation dans laquelle les chemins optiques sont identifiés de façon explicite, depuis chaque point d'émission jusqu'au point courant, avec donc la possibilité d'interpréter les résultats en intégrant les questions de corrélations spectrales entre émission et atténuation. Nous verrons en particulier que chaque bilan radiatif volumique sera vu comme le résultat d'échanges partiels avec les parois opaques du système d'une part et avec les volumes de gaz d'autre part, les images physiques associées étant très différentes dans les deux cas. Dans l'ensemble des formulations intégrales, nous retenons une formulation en puissances nettes échangées (PNE, voir Chap. 3) pour des raisons que nous détaillons ci-après.

4.1.2 Formulation en PNE

On a vu que dans les formulations standard en flux, il est difficile de quantifier l'importance relative des contributions variées à un terme source. Green (1967) suggère que la reformulation des transferts radiatifs en termes d'échanges nets (i.e. incluant de façon explicite le principe de réciprocité) puisse être une aide précieuse d'analyse. Le principe en Echanges nets

sera repris dans le domaine atmosphérique par Joseph et coll. (1976) et par Bresser et coll. (1995) dans des développements analytiques. Des raisonnements similaires dans le domaine des applications ingénieur par Hottel et Sarofim (1967) seront à l'origine de la méthode des zones¹. [Cherkaoui... (1996), Cherkaoui... (1998)] et [Dufresne... (1998), Dufresne... (1999)] montrent que de nouveaux apports théoriques rendent cette approche prometteuse. L'utilisation du principe de réciprocité a également des avantages conséquents d'un point de vue numérique, que ce soit face à des problèmes de complexité géométrique² ou d'épaisseur optique, ou encore lorsque les systèmes sont quasi-isothermes.

Contrairement au chapitre précédent, nous utiliserons ici un choix de présentation formulé à l'aide de chemins optiques, ce qui facilite l'extension de la formulation aux questions de diffusions et de réflexions multiples.

Prenons une cavité constituée de n_v volumes et n_s surfaces. Soient deux éléments quelconques C_i et C_j indifféremment un volume ou une surface sur lesquels on définit un point courant P_i ou P_j . On désigne par $\Gamma(C_i, C_j)$ l'ensemble des chemins optiques γ dont les extrémités P_i et P_j (repérées par les vecteurs $\mathbf{r}_{P_i}(\gamma)$ et $\mathbf{r}_{P_j}(\gamma)$) sont situées dans C_i et C_j . On définit aussi un vecteur unitaire \mathbf{e}_γ , le long du chemin optique γ , qui lui est tangent en tout point, et une abscisse curviligne l . On la note $l_i(\gamma)$ en $\mathbf{r}_{P_i}(\gamma)$ et $l_j(\gamma)$ en $\mathbf{r}_{P_j}(\gamma)$. La transmittivité le long du chemin optique entre P_i et P_j s'exprime par :

$$\tau_\eta(l_{ij}(\gamma)) = \exp\left(-\int_{l_i(\gamma)}^{l_j(\gamma)} dl \kappa_\eta(l)\right)$$

où $l_{ij} = |\mathbf{r}_{P_i} - \mathbf{r}_{P_j}|$ est la longueur totale du chemin. La notation générique de l'échange net d'énergie radiative entre les éléments C_i et C_j est alors par convention :

$$\varphi_{C_i \leftrightarrow C_j} = \int_0^\infty d\eta \int_{\gamma \in \Gamma(C_i, C_j)} \underbrace{d\gamma}_{\text{géométrie}} \underbrace{O(\gamma)}_{\text{optique}} \underbrace{[L_\eta(\mathbf{r}_{P_i}(\gamma)) - L_\eta(\mathbf{r}_{P_j}(\gamma))]}_{\text{énergétique}} \quad (4.1)$$

Cette présentation vise également à aider la phase d'analyse et d'interprétation grâce à la séparation des aspects géométrique, optique et énergétique. La différentielle $d\gamma$ regroupe

¹Du fait des difficultés liés aux réflexions de parois, la mise en oeuvre de la méthode des zones passe souvent cependant, par un abandon de cette réciprocité explicite (méthode des radiosités)

²Il s'agit principalement de la manière dont l'échange peut se faire entre deux volumes ou surfaces de tailles très différentes.

les aspects purement géométriques, à savoir les angles solides, les cosinus des angles d'intersection avec les parois et les fonctions de phase de réflexion et de diffusion. Dans le cas d'une cavité à parois noires sans diffusion, $d\gamma$ s'écrit : $d\gamma = \frac{A}{l_{ij}^2} dC(\mathbf{r}_{P_i}(\gamma)) dC(\mathbf{r}_{P_j}(\gamma))$ avec pour un échange

- Volume-Volume : $A = 1$
- Volume-Surface : $A = |\mathbf{e}_\gamma(l_j) \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})|$
- Surface-Surface : $A = |\mathbf{e}_\gamma(l_j) \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})| |\mathbf{e}_\gamma(l_i) \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_i})|$

où $\mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_i})$ et $\mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})$ sont les normales à S_i et S_j en \mathbf{r}_{P_i} et \mathbf{r}_{P_j} respectivement. Les aspects optiques (non géométriques) sont regroupés dans le facteur O qui se décompose en le produit des propriétés d'émission/absorption aux deux extrémités du chemin et des atténuations par diffusion, absorption de volume et absorption de surface le long de l'ensemble du chemin. Toujours dans le cas simplifié sans réflexion ni diffusion, O devient :

- Volume-Volume : $O(\gamma) = -\frac{\partial^2 \tau_\eta(l_{ij}(\gamma))}{\partial l_i \partial l_j}$
- Volume-Surface : $O(\gamma) = -\frac{\partial \tau_\eta(l_{ij}(\gamma))}{\partial l_j}$
- Surface-Surface : $O(\gamma) = \tau_\eta(l_{ij}(\gamma))$

et comme dans ce cas l'ensemble des chemins optiques entre deux éléments est un ensemble de droites les reliant, en notant \mathbf{e}_Ω le vecteur unitaire dans la direction $(P_i P_j)$, nous retrouvons les **Eq. 3.22** que nous exprimons pour les trois cas fondamentaux :

$$\begin{aligned}
 \varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} &= \int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{V_j} dV(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{1}{l_{ij}^2} \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_j}) \tau_\eta(l_{ij}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \\
 \varphi_{V_i \leftrightarrow S_j} &= \int_0^\infty d\eta \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{S_j} dS(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})}{l_{ij}^2} \tau_\eta(l_{ij}) \kappa_\eta(\mathbf{r}_{P_i}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \\
 \varphi_{S_i \leftrightarrow S_j} &= \int_0^\infty d\eta \int_{S_i} dS(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{S_j} dS(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_i}) \mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})}{l_{ij}^2} \tau_\eta(l_{ij}) \left[L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_j}) - L_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) \right]
 \end{aligned} \tag{4.2}$$

Lorsque pour un système divisé en volumes et surfaces élémentaires nous chercherons à analyser la matrice de l'ensemble des PNE, nous garderons en mémoire la ligne interprétative soutenue par **Eq. 4.1** avec :

- une énergétique fixée par la différence de luminances noires (soit par la différence de températures) entre les deux éléments considérés
- une dimension géométrique qui détermine comment deux éléments se voient l'un l'autre.

- un pouvoir d'échange entre les deux éléments dépendant des propriétés d'émission/absorption, de l'atténuation par le milieu intermédiaire et surtout de leurs corrélations spectrales.

Au sujet de ces difficultés spectrales, nous pouvons d'ores et déjà avancer une image essentielle que nous utiliserons à plusieurs reprises : à même distance, l'atténuation est beaucoup plus forte pour les échanges gaz-gaz que pour les échanges paroi-gaz. En effet, le spectre du rayonnement émis par une paroi est un spectre continu, donc sans corrélation avec le spectre du gaz. Au contraire, le rayonnement émis par le gaz est principalement localisé au centre des raies d'absorption où il sera également réabsorbé et donc rapidement atténué par le milieu. Il en résulte que lors de l'analyse des matrices de PNE, nous retrouverons fréquemment que des échanges gaz-paroi significatifs peuvent avoir lieu à distance alors que les échanges gaz-gaz sont principalement des échanges de proximité.

4.2 Les Modèles de propriétés spectrales

4.2.1 Modèle pour les suies

En ce qui concerne la représentation des propriétés radiatives des suies, conformément à la présentation faite au Chap. 3, la première hypothèse que nous faisons est de considérer comme négligeable leurs propriétés de diffusion. Nous avons vu en effet que les particules de suies sont de faibles dimensions et que la diffusion n'a que peu d'effet aux fréquences que nous considérons.

Pour représenter la dépendance spectrale du coefficient d'absorption en fonction de la fraction volumique de suie f_v , nous utilisons une corrélation simple proposée par [Lee... (1981)] et [Dalzell... (1969)] où η est le nombre d'onde :

$$\kappa_{\eta_{suie}} = 5,5\eta f_v \quad (4.3)$$

Le préfacteur 5,5 dépend de l'hydrocarbure, ici il est ajusté pour le méthane. Etant donné la régularité fréquentielle de ce type de modèle, comme pour la luminance noire, le coefficient d'absorption des suies sera considéré constant sur l'intervalle d'une bande étroite ; on en verra la nécessité lors de la discussion des mélanges gaz et suies.

4.2.2 Modèle pour les gaz formulé en k-distributions

4.2.2.1 Les espèces gazeuses participant au rayonnement

Concernant les gaz, la première chose à faire consiste à s'interroger sur les espèces rayonnantes en combustion. A priori les espèces CH_4 , OH , CO , H_2O et CO_2 sont susceptibles de contribuer aux transferts radiatifs dans l'IR, le visible et l'UV. [Dagusé (1996)] montre que les échanges dans l'UV sont négligeables. Nous allons nous-mêmes négliger le rayonnement des espèces CH_4 et OH pour ne tenir compte que des trois espèces ayant les contributions les plus significatives : CO , H_2O et CO_2 .

4.2.2.2 Le modèle en k-distribution de Domoto

Pour des raisons de précision (ne serait-ce que vis à vis de la dépendance spectrale des propriétés de suies), nous retenons un modèle à bandes étroites pour chacun des trois gaz évoqués ci-dessus. Nous avons vu que les modèles à bandes étroites peuvent être formulés de manière équivalente en termes de transmittivité moyenne ou de k-distribution. La raison pour laquelle nous choisissons une formulation en k-distribution est principalement associée à notre méthodologie de résolution numérique. L'algorithme de Monte Carlo que nous retenons et surtout les méthodes de réduction de variance associées, sont beaucoup plus simples à mettre en oeuvre sur une base de k-distribution, avec des atténuations exponentielles, que sur une base de transmittivités moyennes (non exponentielles).

Nous avons déjà présenté le principe des k-distributions. Le modèle en k-distribution que nous utilisons est construit sur les bases du modèle de Malkmus, pour un volume de gaz homogène composé d'une seule espèce chimique. Le modèle de Malkmus est établi sur les hypothèses suivantes :

- le nombre de raie N contenu dans la bande $\Delta\nu$ est suffisamment élevé pour raisonner en moyenne statistique
- les fréquences des centres de raies sont distribuées aléatoirement de façon uniforme sur l'intervalle
- toutes les raies ont la même demi-largeur à mi-hauteur $\overline{\gamma}$
- les intensités de raies sont distribuées selon une loi de densité de probabilité expo-

nentielle inverse : $p(S) = \frac{1}{S} \exp(-\frac{S}{S^*})$ où S^* est l'intensité moyenne de raie sur une bande

- un profil de raies Lorentzien et un intervalle spectral qui est entouré d'une infinité d'intervalles spectraux aux propriétés statistiques identiques et dont les ailes de raies contribuent à l'absorption dans l'intervalle d'origine.

Pour chaque bande étroite, on définit en particulier la grandeur $\bar{\kappa}$ qui est la valeur moyenne, sur une bande étroite, du coefficient d'absorption et qui est liée à κ_ν par la relation :

$$\bar{\kappa} = \frac{1}{\Delta\nu} \int_0^\infty \kappa_\nu d\nu$$

Cette valeur moyenne du coefficient d'absorption sur une bande étroite sera appelée par la suite “coefficient d'absorption moyen” sans mention répétée aux confusions qui pourraient s'établir avec les différents coefficients d'absorption moyen introduits dans la littérature dans l'espoir de représenter les propriétés spectrales des gaz à partir de modèles gris équivalents. Notre logique est au contraire de conserver strictement toute la complexité spectrale du modèle retenu et ce coefficient moyen représentera donc simplement le moment d'ordre zéro de la k-distributions employée. En aucun cas nous ne nous servons de cette valeur moyenne pour justifier d'un modèle spectral simplifié.

Dans le cadre du modèle de Malkmus, la valeur moyenne du coefficient d'absorption est reliée à l'intensité moyenne des raies, par l'égalité suivante :

$$\bar{\kappa} = \frac{S^*}{\bar{\delta}}$$

où $\bar{\delta}$ est l'écart moyen entre deux centres de raies contiguës. On utilise fréquemment ϕ appelé paramètre de recouvrement des raies ou paramètre de forme :

$$\phi = \frac{2\gamma}{\bar{\delta}}$$

ϕ permet de savoir si le spectre a des raies d'absorption très distinctes (ϕ faible, cas d'une absorption très localisée) ou si les raies se recouvrent de par leur proximité ou leur élargissement (ϕ fort, cas d'un spectre qui à la limite ($\phi \rightarrow \infty$) se rapproche de celui d'un milieu gris).

A partir de ces hypothèses, le modèle de Malkmus permet de construire analytiquement la transmittivité moyenne d'une colonne homogène en concentrations et températures de

longueur l par :

$$\bar{\tau}(l) = \bar{\tau}_M(l; \bar{\kappa}, \phi) = \exp \left[\phi \left(1 - \left(1 + \frac{2\bar{\kappa}l}{\phi} \right)^{1/2} \right) \right] \quad (4.4)$$

Ceci est donc le modèle de Malkmus tel que l'on peut le trouver repris un peu partout dans la littérature. C'est Domoto [Domoto (1974)] qui avance l'idée d'un passage de ce modèle en transmittivité moyenne à un modèle en k-distributions équivalent. Il effectue la transformée de Laplace inverse de l'expression analytique de $\bar{\tau}(l)$ afin de déterminer, selon l' **Eq. 3.10** la fonction densité de probabilité $f(\kappa)$ correspondante :

$$f(\kappa) = f_M(\kappa; \bar{\kappa}, \phi) = \sqrt{\frac{\phi\bar{\kappa}}{2\pi\kappa^3}} \exp \left[\frac{-\phi}{2} \frac{(\kappa - \bar{\kappa})^2}{\bar{\kappa}\kappa} \right]$$

Il a été observé dans [Dufresne... (1999)] que $f(\kappa)$ est mathématiquement ce que l'on nomme une distribution inverse Gaussienne. Il existe de très nombreux écrits sur les propriétés statistiques des distributions inverses Gaussiennes et on peut abondamment tirer bénéfice de ces travaux. En ce qui nous concerne, nous utiliserons à plusieurs reprises l'expression suivante de la fonction de répartition :

$$g(\kappa) = g_M(\kappa; \bar{\kappa}, \phi) = \int_0^\kappa f(\kappa') d\kappa' = \Gamma \left[-\sqrt{\frac{\phi\bar{\kappa}}{\kappa'}} \left(1 - \frac{\kappa}{\bar{\kappa}} \right) \right] + \exp(2\phi) \Gamma \left[-\sqrt{\frac{\phi\bar{\kappa}}{\kappa'}} \left(1 + \frac{\kappa}{\bar{\kappa}} \right) \right] \quad (4.5)$$

Il est également montré dans [Dufresne... (1999)] que les propriétés d'inverse gaussienne de la fonction $f(\kappa)$ permettent l'échantillonnage de κ selon la probabilité $f(\kappa)$ en utilisant la fonction de distribution normale Γ ce qui facilite l'utilisation des k-distributions au sein d'un algorithme de Monte-Carlo. On pourra retrouver les détails de la procédure analytique d'échantillonnage de κ dans l'annexe 3.

4.2.2.3 Données spectroscopiques du laboratoire EM2C

Paramétrage et interpolations

Les paramètres $\bar{\kappa}$, $\bar{\delta}$ et $\bar{\gamma}$ condensent, pour chaque bande étroite, l'ensemble des propriétés spectrales. Ils sont donc indispensables pour établir les densités de probabilité précédentes.

A cet effet, nous exploitons les données spectroscopiques qui nous ont été fournies par J. Taine et A. Soufiani du laboratoire EM2C [Soufiani... (1997)].

Dans cette banque de données, le spectre infrarouge est découpé en bandes régulières de nombre d'onde et sur chaque bande les paramètres intensifs $\bar{k} = \frac{\bar{\kappa}}{X_j P_{tot}} [cm^{-1}.atm^{-1}]^3$ et $\frac{1}{\delta} [cm]$ sont estimés pour un nombre limité de températures, le reste du domaine étant couvert par interpolation linéaire. Ils sont donnés pour un spectre compris entre $150 cm^{-1}$ et $9300 cm^{-1}$ par bandes de largeur $25 cm^{-1}$, soit 367 bandes, et pour une gamme de températures de 300 K à 2900 K par pas de 200 K, soit 14 valeurs de température. Pour un gaz à une température T comprise entre deux températures T_i et T_{i+1} , les relations d'interpolation s'écrivent simplement :

$$\begin{aligned} \bar{\kappa}_j(P_{tot}, T, X_j) &= \frac{\bar{k}_i(T_{i+1} - T) + \bar{k}_{i+1}(T - T_i)}{T_{i+1} - T_i} \cdot P_j \\ &= \frac{\bar{k}_i(T_{i+1} - T) + \bar{k}_{i+1}(T - T_i)}{T_{i+1} - T_i} \cdot P_{tot} \cdot X_j [cm^{-1}] \end{aligned} \quad (4.6)$$

$$\frac{1}{\bar{\delta}_j} = \frac{\frac{1}{\delta_i}(T_{i+1} - T) + \frac{1}{\delta_{i+1}}(T - T_i)}{T_{i+1} - T_i} [cm] \quad (4.7)$$

Les formules pour $\bar{\gamma}$

La demi-largeur de raie, supposée indépendante de la bande étroite, est donnée par des expressions différentes pour chaque gaz absorbant. Ces formules représentent l'élargissement collisionnel et sont donc fonctions de la température, de la pression totale et des pressions partielles des principaux gaz du mélange (N_2, O_2, H_2O, CO_2). Elles sont validées sur une plage qui couvre la plupart des configurations classiques de combustion :

$$\begin{aligned} \bar{\gamma}_{CO} &= \frac{P_{tot}}{P_s} \{0.075 X_{CO_2} \left(\frac{T_s}{T}\right)^{0.6} + 0.12 X_{H_2O} \left(\frac{T_s}{T}\right)^{0.82} + 0.06 \left(\frac{T_s}{T}\right)^{0.7} (1 - X_{CO_2} - X_{H_2O})\} [cm^{-1}] \\ \bar{\gamma}_{CO_2} &= \frac{P_{tot}}{P_s} \left(\frac{T_s}{T}\right)^{0.7} [0.07 X_{CO_2} + 0.058(1 - X_{CO_2} - X_{H_2O}) + 0.1 X_{H_2O}] [cm^{-1}] \\ \bar{\gamma}_{H_2O} &= \frac{P_{tot}}{P_s} \{0.462 X_{H_2O} \left(\frac{T_s}{T}\right) + \left(\frac{T_s}{T}\right)^{0.5} [0.079(1 - X_{CO_2} - X_{O_2}) + 0.106 X_{CO_2} + 0.036 X_{O_2}]\} [cm^{-1}] \end{aligned}$$

avec $T_s = 296 K$ et $P_s = 1 atm$.

³ \bar{k} porte le nom également de coefficient d'absorption réduit moyen sur une bande étroite. $\bar{\kappa} = \bar{k} \cdot P_j = \bar{k} \cdot X_j \cdot P_{tot}$ où P_j est la pression partielle du gaz j.

4.2.3 Mélanges et hétérogénéités

Le modèle en k-distribution que nous venons de présenter est directement utilisable pour un milieu homogène avec un seul gaz absorbant. Pour l'étude de milieux réels tels que ceux de la combustion, il nous faut un jeu d'hypothèses supplémentaires en ce qui concerne les propriétés de mélanges et les effets liés à la déformation du spectre le long d'une colonne hétérogène.

4.2.3.1 Les mélanges

Le coefficient d'absorption monochromatique d'un mélange de trois gaz et de suies est sans ambiguïté la somme des coefficients d'absorption monochromatiques de chaque constituant :

$$\kappa_\eta = \kappa_\eta^s + \kappa_\eta^{H_2O} + \kappa_\eta^{CO_2} + \kappa_\eta^{CO}$$

Mais lorsque nous raisonnons en k-distribution, nous perdons au sein de chaque bande la localisation fréquentielle. Il nous faut donc des hypothèses permettant de construire la distribution du coefficient d'absorption du mélange à partir de celle de ses constituants. La première de ces hypothèses sera pour nous de supposer que les variations fréquentielles de κ_η^s sont à une échelle supérieure à celle de la bande étroite de sorte que κ_η^s pourra être supposé constant à l'intérieur de chaque bande. La seconde hypothèse sera de supposer, en accord avec la littérature du domaine [Gerstell (1993)], que les distributions du coefficient d'absorption pour H_2O , CO_2 et CO sont strictement indépendantes. Cette hypothèse ne pourrait être valable rigoureusement que pour des bandes de fréquences de largeur infinie, mais elle semble néanmoins conduire à de très bons résultats quantitatifs pour des configurations telles que les nôtres. Ainsi pour le calcul de la moyenne fréquentielle d'une quelconque fonction F du coefficient d'absorption, on admettra que :

$$\begin{aligned} \langle F \rangle &= \int d\kappa^{CO} \int d\kappa^{CO_2} \int d\kappa^{H_2O} f(\kappa^{CO}, \kappa^{CO_2}, \kappa^{H_2O}) F(\kappa^{CO} + \kappa^{CO_2} + \kappa^{H_2O} + \kappa^s) \\ \langle F \rangle &= \int d\kappa^{CO} \int d\kappa^{CO_2} \int d\kappa^{H_2O} f(\kappa^{CO}) f(\kappa^{CO_2}) f(\kappa^{H_2O}) F(\kappa^{CO} + \kappa^{CO_2} + \kappa^{H_2O} + \kappa^s) \end{aligned}$$

κ^s prenant une valeur unique dans la bande étroite (Distribution de Dirac). On notera par exemple pour un échange volume-volume dans un milieu homogène, en sommant les

contributions sur toutes les bandes étroites :

$$\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} = \sum_{n=1}^{n_b} \Delta \eta_n \left[\int_0^\infty d\kappa^{co} f(\kappa^{co}) \int_0^\infty d\kappa^{h2o} f(\kappa^{h2o}) \int_0^\infty d\kappa^{co2} f(\kappa^{co2}) \right. \\ \left. \int_{V_i} dV(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{V_j} dV(\mathbf{r}_{P_j}) \frac{1}{l_{ij}^2} \kappa(\mathbf{r}_{P_j}) \tau(l_{ij}) \kappa(\mathbf{r}_{P_i}) \right] \left[\overline{L_b(\mathbf{r}_{P_j})} - \overline{L_b(\mathbf{r}_{P_i})} \right] \quad (4.8)$$

On peut noter que cette hypothèse d'indépendance des distributions des trois gaz conduit à supposer que la transmittivité moyenne du mélange correspond au produit des transmittivités moyennes de chacun des constituants.

4.2.3.2 les hétérogénéités

La question de la représentation des hétérogénéités est très délicate dès lors que l'on choisit de travailler en moyenne sur une bande de fréquence. Comme pour les mélanges, nous nous contentons de retenir une hypothèse simplificatrice parmi celles communément employées dans la littérature sans pousser plus avant la réflexion sur ce point.

Si l'on met de côté un nombre réduit d'études approfondies pour des configurations fortement hétérogènes (panaches de gaz chauds observés à grande distance dans une atmosphère froide, atmosphères planétaires fortement hétérogènes), nous l'avons déjà mentionné au Chap. 3 que les solutions retenues pour la prise en compte des effets d'hétérogénéités sont principalement au nombre de deux : l'approximation de Curtis-Godson est utilisée pour les travaux à base de modèles en transmittivité moyenne, alors que l'approximation des k-distributions corrélées est pensée pour les modèles en k-distributions.

Etant donné le choix que nous faisons d'un modèle en k-distributions, c'est dans un premier temps l'approximation des k-distributions corrélées qui devrait être retenue. Selon cette technique, on fait l'hypothèse que dans un milieu hétérogène le long d'un chemin optique, la grandeur conservée est la valeur de la fonction de répartition $g(\kappa)$ **Eq. 4.5**. En pratique, si l'on connaît la valeur du coefficient d'absorption κ_1 en un point P_1 quelconque d'un chemin, la valeur du coefficient d'absorption en tout point P_2 du même chemin est liée à κ_1 par la relation $\kappa_2 = g_2^{-1}(g_1(\kappa_1))$. Cette technique nécessite donc de pouvoir inverser la fonction de répartition. A notre connaissance, il n'y a pas de solution analytique simple

à ce problème dans le cas du modèle de Malkmus. Cette difficulté ne serait pas pour nous un obstacle si nous acceptions d'utiliser une technique de résolution numérique déterministe avec un nombre réduit de points de discrétisation de l'intervalle de g (voir Chap. 3) : des techniques d'inversion numériques pourraient alors être utilisées au préalable en chaque point de discrétisation, ou bien encore nous pourrions directement exploiter une banque de données CK du type de celle du laboratoire EM2C [Soufiani... (1997)]. En pratique, bien que nous ne retenions pas cette solution ultérieurement, nous avons exploré la possibilité d'une inversion numérique par tabulation et certains résultats obtenus avec cette démarche seront présentés au Chap.6. On peut en trouver les détails dans l'Annexe 4.

Cependant, nous verrons plus loin qu'une des raisons pour laquelle nous faisons le choix d'une résolution par la méthode de Monte Carlo est précisément qu'elle à l'avantage de ne pas nécessiter de choix préalable de discrétisation. Nous tenons donc à la continuité de notre description de l'espace des coefficients d'absorption. Ce point de vue nous a finalement poussé à nous retourner vers l'approximation de Curtis-Godson avec l'ambiguïté que sa formulation habituelle en transmittivité moyenne est différente de celle que nous avons retenue (k-distributions).

Néanmoins nous avons vu qu'il existe une correspondance stricte entre les deux formulations (transmittivité, k-distribution). Dans le cas homogène, il apparaît clairement que le terme optique O de l'**Eq.** 4.1 peut prendre en moyenne sur la bande étroite les trois formes suivantes :

- Volume-Volume : $\overline{O(\gamma)} = -\frac{\partial^2 \bar{\tau}(l_{ij}(\gamma))}{\partial l_i \partial l_j} = \int_0^\infty d\kappa f(\kappa) \kappa^2 \exp(-\kappa l_{ij})$
- Volume-Surface : $\overline{O(\gamma)} = -\frac{\partial \bar{\tau}(l_{ij}(\gamma))}{\partial l_j} = \int_0^\infty d\kappa f(\kappa) \kappa \exp(-\kappa l_{ij})$
- Surface-Surface : $\overline{O(\gamma)} = \bar{\tau}(l_{ij}(\gamma)) = \int_0^\infty d\kappa f(\kappa) \exp(-\kappa l_{ij})$

La question est donc ici de retrouver la même correspondance dans le cas hétérogène.

Dans l'approximation de Curtis-Godson, on admet que la transmittivité moyenne d'une colonne hétérogène suit la même loi que celle d'une colonne homogène équivalente. Les paramètres spectraux de cette colonne homogène sont définis comme des moyennes pondérées des propriétés locales le long de la colonne de longueur l_{ij} repérée en ses extrémités par les abscisses curvilignes l_i et l_j :

$$\bar{\kappa}_{CG} = \frac{\int_{l_i}^{l_j} dx \bar{\kappa}(x)}{\int_{l_i}^{l_j} dx} \quad (4.9)$$

$$\phi_{CG} = \frac{\int_{l_i}^{l_j} dx \bar{\kappa}(x) \phi}{\int_{l_i}^{l_j} dx \bar{\kappa}(x)} \quad (4.10)$$

Si l'on retient le modèle de Malkmus, $f(\kappa)$ devient $f_M(\kappa; \bar{\kappa}, \phi)$ et la transmittivité moyenne de la colonne hétérogène s'écrit donc sous l'hypothèse de Curtis-Godson :

$$\bar{\tau}_{CG}(l_{ij}) = \tau_M(l_{ij}; \bar{\kappa}_{CG}, \phi_{CG})$$

ce qui par définition de la densité de probabilité f_M peut s'écrire également :

$$\bar{\tau}_{CG}(l_{ij}) = \int_0^\infty d\kappa f_M(\kappa; \bar{\kappa}_{CG}, \phi_{CG}) \exp(-\kappa l_{ij})$$

Nous sommes donc en mesure d'exprimer \bar{O} dans le cas hétérogène en termes de k-distributions comme :

- Volume-Volume : $\bar{O}(\gamma) = - \int_0^\infty d\kappa \frac{\partial^2}{\partial l_i \partial l_j} [f_M(\kappa; \bar{\kappa}_{CG}, \phi_{CG}) \exp(-\kappa l_{ij})]$
- Volume-Surface : $\bar{O}(\gamma) = - \int_0^\infty d\kappa \frac{\partial}{\partial l_i} [f_M(\kappa; \bar{\kappa}_{CG}, \phi_{CG}) \exp(-\kappa l_{ij})]$
- Surface-Surface : $\bar{O}(\gamma) = \int_0^\infty d\kappa [f_M(\kappa; \bar{\kappa}_{CG}, \phi_{CG}) \exp(-\kappa l_{ij})]$

La difficulté qui apparaît alors concerne la dépendance de $\bar{\kappa}_{CG}$ et de ϕ_{CG} au chemin optique. Ces coefficients ne peuvent donc pas, pour les échanges volume-volume et volume-surface, se soustraire à l'action des dérivées partielles. Tout d'abord, concernant la dépendance de $\bar{\kappa}_{CG}$ au chemin optique nous allons utiliser une propriété d'homothétie des fonctions inverses gaussiennes qui permet de s'affranchir rapidement du problème. On note pour cela :

$$a = \frac{\kappa}{\bar{\kappa}_{CG}}$$

La formule de la partie optique de l'échange Surface-Surface devient alors :

$$\bar{O}(\gamma) = \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \exp(-a \int_{l_i}^{l_j} \bar{\kappa}(l) dl)$$

En ce qui concerne les autres échanges nous allons montrer comment il est possible de calculer l'ensemble des dérivées partielles qui affectent la fonction de Malkmus par l'intermédiaire de ϕ_{CG} .

Un seul gaz Nous nous plaçons d'abord dans le cas d'un seul gaz. La difficulté consiste à exprimer les différentielles qui se trouvent sous le signe intégral par rapport aux abscisses curvilignes l_i et l_j repérant les extrémités du rayon lumineux dans un volume ou sur une

surface. On notera pour simplifier $\bar{\kappa}_i = \bar{\kappa}(l_i)$ et $\bar{\kappa}_j = \bar{\kappa}(l_j)$ et on pourra observer par exemple que : $\partial_{l_i}(l_{ij}\bar{\kappa}_{CG}) = \bar{\kappa}_i$. On rappelle que $a = \frac{\kappa}{\bar{\kappa}_{CG}}$.

Commençons par exprimer $\overline{O}(\gamma)$ pour le cas Volume-Surface :

$$\begin{aligned}
 \overline{O}(\gamma) &= -\partial_{l_i} \int_0^\infty d\kappa [f_M(\kappa; \bar{\kappa}_{CG}, \phi_{CG}) \exp(-\kappa l_{ij})] \\
 &= -\partial_{l_i} \int_0^\infty da [f_M(a; 1, \phi_{CG}) \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij})] \\
 &= -\int_0^\infty da [\partial_{l_i} [f_M(a; 1, \phi_{CG})] \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) - f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij})] \\
 &= \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \underbrace{\left[1 - \frac{\partial_{l_i} f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a}\right]}_{\text{terme correctif } \alpha_{vs}(a)} \\
 &= \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vs}(a)
 \end{aligned} \tag{4.11}$$

On remplace alors $\bar{\kappa}_{CG}$ par son expression (**Eq. 4.9**) pour obtenir l'expression Volume-Surface de $\overline{O}(\gamma)$:

$$\overline{O}(\gamma) = \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-a \int_{l_i}^{l_j} \bar{\kappa}(l) dl) \alpha_{vs}(a) \tag{4.12}$$

avec,

$$\alpha_{vs}(a) = \left[1 - \frac{\partial_{l_i} f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a}\right] \tag{4.13}$$

On trouvera des compléments mathématiques pour exprimer analytiquement $\alpha_{vs}(a)$ en fonction de paramètres spectroscopiques dans l'annexe 5.

Passons à la dernière expression que nous devons démontrer toujours dans le cas d'un seul gaz, il s'agit du cas Volume-Volume où dans l'expression intégrale de $\overline{O}(\gamma)$ on trouve

une dérivée partielle seconde :

$$\begin{aligned}
\overline{O}(\gamma) &= -\frac{\partial^2}{\partial l_i \partial l_j} \int_0^\infty d\kappa [f_M(\kappa; \overline{\kappa}_{CG}, \phi_{CG}) \exp(-\kappa l_{ij})] \\
&= -\frac{\partial^2}{\partial l_i \partial l_j} \int_0^\infty da [f_M(a; 1, \phi_{CG}) \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij})] \\
&= -\int_0^\infty da \left[\frac{\partial^2}{\partial l_i \partial l_j} (f_M(a; 1, \phi_{CG})) \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) + \frac{\partial}{\partial l_j} (f_M(a; 1, \phi_{CG})) \overline{\kappa}_i a \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \right. \\
&\quad \left. - \frac{\partial}{\partial l_i} (f_M(a; 1, \phi_{CG})) \overline{\kappa}_j a \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) - f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \right] \\
&= \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \\
&\quad \underbrace{\left[1 + \frac{1}{\overline{\kappa}_i} \frac{\partial l_i f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} - \frac{1}{\overline{\kappa}_j} \frac{\partial l_j f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} - \frac{1}{\overline{\kappa}_i \overline{\kappa}_j} \frac{\partial l_i \partial l_j f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} \right]}_{\text{terme correctif } \alpha_{vv}(a)} \\
&= \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vv}(a)
\end{aligned} \tag{4.14}$$

On remplace alors $\overline{\kappa}_{CG}$ par son expression (**Eq. 4.9**) pour obtenir l'expression Volume-Volume de $\overline{O}(\gamma)$:

$$\overline{O}(\gamma) = \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-a \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}(l) dl) \alpha_{vv}(a) \tag{4.15}$$

avec,

$$\alpha_{vv}(a) = \left[1 + \frac{1}{\overline{\kappa}_i} \frac{\partial l_i f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} - \frac{1}{\overline{\kappa}_j} \frac{\partial l_j f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} - \frac{1}{\overline{\kappa}_i \overline{\kappa}_j} \frac{\partial l_i \partial l_j f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} \right] \tag{4.16}$$

Le lecteur trouvera dans l'annexe 5 la possibilité d'exprimer $\alpha_{vv}(a)$ de manière analytique à partir des paramètres spectroscopiques de bandes.

Pour un mélange de gaz Ces écritures se généralisent à plusieurs gaz. On désigne les gaz respectivement par 1, 2 et 3 et on leur associe les fonctions de Malkmus que l'on note pour alléger l'écriture : f_{M_1} f_{M_2} et f_{M_3} . Pour effectuer le calcul des fonctions $\overline{O}(\gamma)$ dans le cas de plusieurs gaz il faut alors remplacer f_M par le produit des fonctions de Malkmus de chacun des trois gaz : f_{M_1} f_{M_2} et f_{M_3} et le coefficient d'absorption κ par la somme des coefficients d'absorption des gaz et éventuellement des suies si elles sont présentes. Les expressions des

dérivées partielles première et seconde de la fonction de Malkmus qui servent au calcul de $\alpha_{vs}(a)$ et $\alpha_{vv}(a)$ sont modifiées. Elles ont pour expression :

$$\frac{\partial_{l_i} f_M}{f_M} = \frac{\partial_{l_i} f_{M_1}}{f_{M_1}} + \frac{\partial_{l_i} f_{M_2}}{f_{M_2}} + \frac{\partial_{l_i} f_{M_3}}{f_{M_3}} \quad (4.17)$$

et,

$$\begin{aligned} \frac{\partial_{l_i} \partial_{l_j} f_M}{f_M} &= \frac{\partial_{l_i} \partial_{l_j} f_{M_1}}{f_{M_1}} + \frac{\partial_{l_i} \partial_{l_j} f_{M_2}}{f_{M_2}} + \frac{\partial_{l_i} \partial_{l_j} f_{M_3}}{f_{M_3}} \\ &\quad + \partial_{l_j}(f_{M_1}) \left[\frac{1}{f_{M_1}} \frac{\partial_{l_i} f_M}{f_M} + \partial_{l_i} \frac{1}{f_{M_1}} \right] \\ &\quad + \partial_{l_j}(f_{M_2}) \left[\frac{1}{f_{M_2}} \frac{\partial_{l_i} f_M}{f_M} + \partial_{l_i} \frac{1}{f_{M_2}} \right] \\ &\quad + \partial_{l_j}(f_{M_3}) \left[\frac{1}{f_{M_3}} \frac{\partial_{l_i} f_M}{f_M} + \partial_{l_i} \frac{1}{f_{M_3}} \right] \\ &= \sum_{a=1,2,3} \frac{\partial_{l_i} \partial_{l_j} f_{M_a}}{f_{M_a}} + \sum_{a=1,2,3} \sum_{\substack{b=1,2,3 \\ b \neq a}} \left(\frac{\partial_{l_i} f_{M_a}}{f_{M_a}} \frac{\partial_{l_j} f_{M_b}}{f_{M_b}} \right) \end{aligned} \quad (4.18)$$

On trouvera dans l'annexe 5 tout les compléments mathématiques nécessaires pour exprimer analytiquement l'ensemble de ces dérivées partielles.

Remarque : Dans le cas particulier où le paramètre de forme ϕ est constant le long d'un chemin alors on a $\phi_i = \phi_j = \phi_{CG}$. Dans ce cas, les expressions des termes correcteurs α que nous venons d'établir sont égales à l'unité parce que les dérivées partielles première et seconde s'annulent (Cf annexe 5). On s'aperçoit alors que l'hypothèse de Curtis-Godson et l'hypothèse de séparabilité du spectre sont équivalentes pour ce cas particulier où ϕ est constant. En effet, sous les exponentielles, le coefficient d'absorption apparaît comme le produit d'une fonction de l'espace et d'une fonction spectrale [Goody (1989), Pierrot (1997)]. La mauvaise performance de l'hypothèse de séparabilité pour le traitement des hétérogénéités sera illustrée au Chap.6 en même temps que seront comparés les hypothèses des k-corrélés (CK) et de Curtis-Godson (CG) sur des configurations plans parallèles.

Compléments :

- D'un point de vue pratique, les développements précédents appellent trois remarques. Tout d'abord, pour une validation, la bonne marche de la méthode sera illustrée sur des cas tests au Chap. 6.

- Un second point concerne la fonction de Malkmus $f_M(a; 1, \phi_{CG})$ qui, comme nous le verrons ultérieurement, sera utilisée à l'origine d'un chemin optique, dans le cadre de la méthode Monte Carlo, pour générer aléatoirement le coefficient d'absorption. Or, au début du chemin la valeur de ϕ_{CG} n'est pas encore connue. Pour contourner cette difficulté nous utilisons la fonction $f_M(a; 1, \phi_{initial})$ lors des générations aléatoires et nous corrigeons le terme d'échange par le rapport $\frac{f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{initial})}$ à chaque extrémité de chemin.
- Notre troisième et dernier complément concerne les coefficients correcteurs $\alpha(a)$ que nous avons mis en évidence pour tenir compte de l'effet des dérivées partielles. Leurs dépendances à $a = \frac{\kappa}{\bar{\kappa}_{CG}}$ peut être forte et provoquer des difficultés d'intégration. Il est alors possible de bénéficier du fait que la transmittivité moyenne est accessible analytiquement⁴ pour extraire le coefficient correcteur $\alpha(a)$ de l'intégrale et le remplacer par un terme correcteur moyen sur une bande étroite qui vient se placer en pré-facteur devant l'intégrale spectrale.

Le principe, pour le cas Volume-Surface, est le suivant :

$$\begin{aligned}
 \overline{O}(\gamma) &= \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vs}(a) \\
 &= \frac{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vs}(a)}{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij})} \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \\
 &= \alpha_{vs}^{tot} \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \\
 &= \alpha_{vs}^{tot} \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-a \int_{l_i}^{l_j} \bar{\kappa}(l) dl)
 \end{aligned} \tag{4.19}$$

où α_{vs}^{tot} est une moyenne pondérée des $\alpha_{vs}(a)$, qui s'écrit :

$$\alpha_{vs}^{tot} = \frac{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vs}(a)}{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \bar{\kappa}_i a \exp(-\bar{\kappa}_{CG} a l_{ij})} \tag{4.20}$$

On peut montrer qu'elle se met sous la forme suivante :

$$\alpha_{vs}^{tot} = \frac{\partial_{l_i} \bar{\tau}(l_{ij}; \bar{\kappa}_{CG}(l_{ij}), \phi_{CG}(l_{ij}))}{\left\{ \partial_{l_i} \bar{\tau}(l_{ij}; \bar{\kappa}_{CG}(l_{ij}), \phi) \right\}_{\phi=\phi_{CG}}} \tag{4.21}$$

⁴On retrouve ici le fait que de raisonner en k-distributions à partir d'un modèle de transmittivité moyenne sous-entend que, pour des raisons numériques et d'interprétations physiques, on fait le choix délibéré de reconstruire le résultat de l'intégrale spectrale connu analytiquement.

où $\phi = \phi_{CG}$ signifie que le numérateur est évalué sans tenir compte de la dépendance de ϕ_{CG} au chemin optique.

On obtient une formule identique pour le cas Volume-Volume :

$$\begin{aligned}
 \overline{O}(\gamma) &= \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vv}(a) \\
 &= \frac{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vv}(a)}{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij})} \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \\
 &= \alpha_{vv}^{tot} \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \\
 &= \alpha_{vv}^{tot} \int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-a \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}(l) dl)
 \end{aligned} \tag{4.22}$$

avec,

$$\alpha_{vv}^{tot} = \frac{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij}) \alpha_{vv}(a)}{\int_0^\infty da f_M(a; 1, \phi_{CG}) \overline{\kappa}_j \overline{\kappa}_i a^2 \exp(-\overline{\kappa}_{CG} a l_{ij})} \tag{4.23}$$

et :

$$\alpha_{vs}^{tot} = \frac{\frac{\partial^2}{\partial l_i \partial l_j} \overline{\tau}(l_{ij}; \overline{\kappa}_{CG}(l_i), \phi_{CG}(l_i))}{\left\{ \frac{\partial^2}{\partial l_i \partial l_j} \overline{\tau}(l_{ij}; \overline{\kappa}_{CG}(l_i), \phi) \right\}_{\phi=\phi_{CG}}} \tag{4.24}$$

Les deux nouveaux coefficients correcteurs α_{vs}^{tot} et α_{vv}^{tot} , qui remplacent $\alpha_{vs}(a)$ et $\alpha_{vv}(a)$ qui se trouvaient sous l'intégrale, peuvent alors se calculer à partir de la formule analytique de $\overline{\tau}$ (**Eq. 4.4** page 81). Le résultat non trivial de ces développements mathématiques pour les mélanges de gaz a été reporté dans l'annexe 5.

4.3 Solution numérique par la méthode de Monte-Carlo

4.3.1 Choix de la méthode de Monte Carlo

Les raisons pour lesquelles nous choisissons la méthode de Monte Carlo (voir Chap. 3) pour la résolution numérique de l'**Eq. 4.1** sont diverses. L'une d'entre elles est sans doute que notre travail s'est inscrit dans la continuité des travaux d'une équipe de recherche qui avait placé la méthode de Monte Carlo au centre de ses préoccupations. Mais les arguments suivants sont plus directement associées aux problèmes spécifiques de la combustion.

Une méthode “exacte” L’avantage le plus réputé de la méthode de Monte Carlo par rapport aux méthodes déterministes est de ne pas imposer un choix de discrétisation (avec des erreurs numériques associées). On lit souvent pour cette raison que la méthode de Monte Carlo est une méthode “exacte”. Exacte voulant dire que pour un nombre infini de réalisations aléatoires on obtient la solution du modèle posé sans erreur liée au schéma numérique. En pratique, le nombre de réalisations aléatoires est limité, mais l’incertitude associée peut alors être quantifiée de façon fiable. Une barre d’erreur statistique sera donc systématiquement associée aux calculs Monte Carlo que nous présenterons.

En ce qui nous concerne, cette assurance de fiabilité apparaît comme essentielle dès que l’on considère la diversité des configurations de combustion auxquelles nous pensons à terme pouvoir être confrontés. A titre d’exemple, nous avons mentionné auparavant les questions de discrétisation de l’espace des coefficients d’absorption au sein de chaque bande étroite. Selon les auteurs et selon les configurations (type de spectre, épaisseur optique, profil de température) le nombre de points de discrétisation requis peut aller de quelques unités à plusieurs dizaines, et sans expérience préalable il est difficile d’être confiant quant à cette exigence de discrétisation en fonction de la précision recherchée. En choisissant un algorithme de Monte Carlo nous assurons indépendamment de la configuration une description continue de la distribution du coefficient d’absorption, avec comme seul risque d’observer en fin de simulation que les barres d’erreurs ne sont pas satisfaisantes et que par conséquent il est nécessaire d’augmenter le nombre de réalisations aléatoires (ou d’améliorer le choix des densités de probabilités, voir ci-après).

Les dimensions spectrales et géométriques Contrairement aux méthodes déterministes, pour lesquelles le coût numérique augmente à la puissance de la dimension du problème (produit des nombres de points de discrétisation de chaque dimension), la méthode de Monte Carlo est particulièrement adaptée à la résolution d’intégrales multiples délicates. Cette affirmation est aussi ambiguë que celle d’exactitude, en ce sens que ce n’est pas sans un effort conséquent de formulation et de réduction de variance que l’on finit par afficher de bon comportements numériques. Il reste néanmoins que ce potentiel est réel et qu’il fait de la méthode de Monte Carlo un outil privilégié pour l’étude de configurations complexes en combustion.

La complexité des problèmes radiatifs de combustion est principalement liée à la combinaison des difficultés spectrales associées aux gaz et des difficultés géométriques caractéristiques des systèmes de combustion. Imaginons à titre d'illustration, dans une démarche déterministe, que le spectre est découpé en 400 bandes étroites et que dans chaque bande on discrétise l'espace des coefficients d'absorption en une dizaine de points. Chaque calcul radiatif se résume donc à la succession de 4000 calculs radiatifs pseudo-monochromatiques indépendants. Pour une configuration géométrique non triviale, la résolution de l'équation de transfert radiatif nécessite une discrétisation angulaire suffisamment détaillée. Admettons qu'un minimum réaliste pour une décomposition se situe entre 20 et 30 éléments de décomposition angulaire. Nous en arrivons au niveau de 100000 points de discrétisation de par la seule combinaison des dimensions spectrales et angulaires, avant même d'avoir considéré la dimension spatiale qui intervient en produit. Ces ordres de grandeur grossiers⁵ fixent le niveau de complexité pratique des intégrales multiples du rayonnement en combustion et suffisent à justifier un intérêt pour les démarches statistiques.

Néanmoins ces méthodes statistiques nécessitent de nombreux travaux d'optimisation et ce n'est que récemment que les calculs Monte Carlo ont pu apparaître compétitifs face aux démarches déterministes. Pour l'instant les travaux proposant une démonstration convaincante de cette solution méthodologique en milieux gazeux restent peu nombreux. Les étapes franchies en termes de formulation et d'optimisation spectrale sont néanmoins conséquentes et permettent de notre point de vue de considérer l'algorithme de Monte Carlo comme bien adapté à des fins pratiques en combustion.

Réflexion et diffusion La dernière raison motivant notre choix de la méthode de Monte Carlo est commune à tous les utilisateurs de cette méthodologie : il s'agit de sa (relative) simplicité de mise en oeuvre. Les algorithmes de Monte Carlo sont très proches des images physiques corpusculaires du rayonnement. On retrouve au plus bas niveau de la programmation une logique de transport corpusculaire qui facilite beaucoup la mise en oeuvre et

⁵Dans cette description, nous ne raisonnons qu'avec un seul gaz absorbant. Pour un mélange de trois gaz, en supposant toujours 10 points de discrétisation pour l'espace des coefficients d'absorption de chaque gaz, nous nous retrouvons avec $10 \times 10 \times 10 \times 400$ calculs pseudo-monochromatiques indépendants. Donc, sauf à produire une banque de données de k-distribution pour chacun des mélanges rencontrés, l'estimation ci-dessus est à majorer de deux ordres de grandeur.

l'adaptation des algorithmes existants. En particulier, l'extension vers des complexité physiques croissantes, telles que la représentation de parois réalistes (dépendance fréquentielle, réflexion anisotrope), ou des propriétés de diffusion du milieu, ne pose aucune difficulté pratique insurmontable.

4.3.2 Description de l'algorithme

La méthode de Monte Carlo dans son principe à été décrite au Chap. 3. Nous décrivons ici, l'ensemble des points techniques tels que nous les avons utilisé et tels qu'ils peuvent être repris pour réaliser un code dans une configuration gaz/suies, sans diffusion et avec des parois noires. La mise en oeuvre de Monte Carlo pour le calcul de l'**Eq. 4.1**, avec les modèles spectraux que nous avons retenus, passe par la définition de lois de probabilités pour la génération aléatoire de chacune des variables du problème :

- p_n pour chaque bande étroite n parmi les 367 bandes couvrant le spectre I.R.,
- $p(a)$ pour le coefficient d'absorption de chaque gaz au sein de la bande étroite ($a = \kappa/\bar{\kappa}$),
- $p(\mathbf{r}_{P_i})$ pour le point courant P_i dans le premier élément de volume ou de surface,
- $p(\mathbf{r}_{P_j})$ pour le point courant P_j dans le second élément de volume ou de surface.

L'**Eq. 4.1** peut alors être réécrite sous la forme de la moyenne pondérée d'une fonction w qui est le rapport de l'intégrant de **Eq. 4.1** et du produit des lois de probabilités :

$$\varphi_{C_i \leftrightarrow C_j} = \sum_{n=1}^{n_b} p_n \Delta\eta_n \left[\int_0^\infty da^{co} p(a^{co}) \int_0^\infty da^{h2o} p(a^{h2o}) \int_0^\infty da^{co2} p(a^{co2}) \int_{C_i} dC(\mathbf{r}_{P_i}) p(\mathbf{r}_{P_i}) \int_{C_j} dC(\mathbf{r}_{P_j}) p(\mathbf{r}_{P_j}) \right] w \quad (4.25)$$

avec,

$$w = \frac{A}{l_{ij}^2} f_M(a^{co}; 1, \phi_{CG}^{co}) f_M(a^{co2}; 1, \phi_{CG}^{co2}) f_M(a^{h2o}; 1, \phi_{CG}^{h2o}) O(\gamma) \frac{\left[\overline{L_b(\mathbf{r}_{P_j})^n} - \overline{L_b(\mathbf{r}_{P_i})^n} \right]}{p_n p(a^{co}) p(a^{h2o}) p(a^{co2}) p(\mathbf{r}_{P_i}) p(\mathbf{r}_{P_j})} \quad (4.26)$$

où $\overline{L_b(\mathbf{r}_{P_j})^n}$ représente la valeur moyenne de la luminance noire dans la bande étroite n et où $O(\gamma)$ prend les formes suivantes en accord avec nos hypothèses sur les mélanges hétérogènes :

– Volume-Volume :

$$\begin{aligned}
O(\gamma) = & [\overline{\kappa}^{h2o}(\mathbf{r}_{P_i}) a^{h2o} + \overline{\kappa}^{co2}(\mathbf{r}_{P_i}) a^{co2} + \overline{\kappa}^{co}(\mathbf{r}_{P_i}) a^{co}] \\
& [\overline{\kappa}^{h2o}(\mathbf{r}_{P_j}) a^{h2o} + \overline{\kappa}^{co2}(\mathbf{r}_{P_j}) a^{co2} + \overline{\kappa}^{co}(\mathbf{r}_{P_j}) a^{co}] \\
& \exp(-a^{h2o} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{h2o} l \, dl) \exp(-a^{co2} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{co2} l \, dl) \exp(-a^{co} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{co} l \, dl) \quad (4.27) \\
& \exp(-\int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^s l \, dl) (\alpha_{vv}^{tot})
\end{aligned}$$

– Volume-Surface :

$$\begin{aligned}
O(\gamma) = & [\overline{\kappa}^{h2o}(\mathbf{r}_{P_i}) a^{h2o} + \overline{\kappa}^{co2}(\mathbf{r}_{P_i}) a^{co2} + \overline{\kappa}^{co}(\mathbf{r}_{P_i}) a^{co}] \\
& \exp(-a^{h2o} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{h2o} l \, dl) \exp(-a^{co2} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{co2} l \, dl) \exp(-a^{co} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{co} l \, dl) \quad (4.28) \\
& \exp(-\int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^s l \, dl) (\alpha_{vs}^{tot})
\end{aligned}$$

– Surface-Surface :

$$\begin{aligned}
O(\gamma) = & \exp(-a^{h2o} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{h2o} l \, dl) \exp(-a^{co2} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{co2} l \, dl) \exp(-a^{co} \int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^{co} l \, dl) \\
& \exp(-\int_{l_i}^{l_j} \overline{\kappa}^s l \, dl) \quad (4.29)
\end{aligned}$$

L'algorithme de Monte Carlo correspondant consiste en une série de N évaluations de w pour des valeurs de n , a^{h2o} , a^{co2} , a^{co} , \mathbf{r}_{P_i} et \mathbf{r}_{P_j} générées aléatoirement selon les densités de probabilités qu'il nous reste à définir, $\varphi_{C_i \leftrightarrow C_j}$ étant alors estimé comme la moyenne de la fonction w :

$$\varphi_{C_i \leftrightarrow C_j} \approx \frac{1}{N} \sum_{m=1}^N w_m$$

avec comme estimation de l'incertitude statistique :

$$\sigma \approx \frac{1}{\sqrt{N}} \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{m=1}^N w_m^2 - \left(\frac{1}{N} \sum_{m=1}^N w_m \right)^2}$$

4.4 Méthodologie de couplage avec la combustion

Nous avons vu au Chap. 3 que le temps de calcul pour le radiatif peut représenter une réelle difficulté lors du couplage avec la combustion. En effet, les principes de résolution

numérique en combustion sont pour la plupart basés sur des algorithmes itératifs qui pour être précis doivent inclure les calculs radiatifs. Face à cette difficulté, nous choisissons une démarche qui consiste, pour un profil initial de températures et de concentrations, à calculer simultanément les termes sources radiatifs et leurs sensibilités à l'ensemble des variables du problème (concentrations et températures). Le couplage avec la combustion peut alors se faire ensuite sur la base d'un développement de Taylor au premier ordre des termes radiatifs. C'est le modèle que nous appellerons TLM désormais. Pour effectuer une validation, un calcul radiatif détaillé par Monte Carlo est relancé à la fin d'une simulation couplée avec le modèle TLM de façon à s'assurer que la solution couplée est restée dans la plage de linéarité du modèle TLM.

Cette approche ne serait pas envisageable sans avoir au préalable proposé une solution efficace pour le calcul des matrices de sensibilités. Cette solution est fournie par l'algorithme de Monte Carlo qui peut être très simplement adapté, de façon à estimer l'ensemble des sensibilités en parallèle du calcul de terme source. En effet, dans nos calculs, le principal coût est celui associé à l'ensemble des générations aléatoires et des suivis de rayons. Le calcul de la fonction w et les calculs de moyenne sont sans difficultés. On peut donc envisager, pour chaque jeu de générations aléatoires, de ne pas calculer uniquement la fonction w mais également de calculer les fonctions correspondant à chacune des dérivées par rapport aux concentrations et températures. Pour toute variable Z , on peut en effet écrire la sensibilité correspondante comme la moyenne pondérée d'une fonction w_Z et donc de l'estimer selon [de Guilhem de Lataillade... (2001)] :

$$\frac{\partial}{\partial Z} \varphi_{C_i \leftrightarrow C_j} \approx \frac{1}{N} \sum_{m=1}^N w_{Z,m}$$

avec :

$$w_Z = \frac{A}{l_{ij}^2} \frac{\partial}{\partial Z} \left(f_M(a^{co}; 1, \phi_{CG}^{co}) f_M(a^{co2}; 1, \phi_{CG}^{co2}) f_M(a^{h2o}; 1, \phi_{CG}^{h2o}) O(\gamma) \right. \\ \left. \frac{\left[\overline{L_b(\mathbf{r}_{P_j})^n} - \overline{L_b(\mathbf{r}_{P_i})^n} \right]}{p_n p(a^{co}) p(a^{h2o}) p(a^{co2}) p(\mathbf{r}_{P_i}) p(\mathbf{r}_{P_j})} \right)$$

En première approximation, lors du calcul de ces dérivées partielles, nous négligeons les effets de déformation du spectre liés aux hétérogénéités. Cela signifie que nous négligeons les

variations de ϕ_{CG} , α_{vv} et α_{vs} . Nous faisons de plus l'hypothèse que l'essentiel de la dépendance en température des échanges nets passe par celle de la luminance noire et nous négligerons donc les dérivées de $\bar{\kappa}$ et ϕ par rapport aux températures. Ces deux simplifications nous permettent d'écrire, pour les sensibilités aux concentrations (fractions molaires ou fraction volumique de suie) :

$$w_X = \frac{A}{l_{ij}^2} \left(f_M(a^{co}; 1, \phi_{CG}^{co}) f_M(a^{co2}; 1, \phi_{CG}^{co2}) f_M(a^{h2o}; 1, \phi_{CG}^{h2o}) \frac{\left[\overline{L_b(\mathbf{r}_{P_j})^n} - \overline{L_b(\mathbf{r}_{P_i})^n} \right]}{p_n p(a^{co}) p(a^{h2o}) p(a^{co2}) p(\mathbf{r}_{P_i}) p(\mathbf{r}_{P_j})} \right) \frac{\partial}{\partial X} O(\gamma)$$

et pour les sensibilités aux températures :

$$w_T = \frac{A}{l_{ij}^2} \left(f_M(a^{co}; 1, \phi_{CG}^{co}) f_M(a^{co2}; 1, \phi_{CG}^{co2}) f_M(a^{h2o}; 1, \phi_{CG}^{h2o}) O(\gamma) \frac{\frac{\partial}{\partial T} \left[\overline{L_b(\mathbf{r}_{P_j})^n} - \overline{L_b(\mathbf{r}_{P_i})^n} \right]}{p_n p(a^{co}) p(a^{h2o}) p(a^{co2}) p(\mathbf{r}_{P_i}) p(\mathbf{r}_{P_j})} \right)$$

pour fixer les idées, le modèle TLM que nous proposons peut s'écrire sous la forme suivante, où n_{var} est le nombre de variables liées aux concentrations de gaz et de suies et n_{zone} le nombre de zones où on effectue un calcul radiatif du terme source :

$$S_r(\mathbf{r}_P) = S_r(\mathbf{r}_P)|_{\text{initial}} + \sum_{k=1}^{n_{var}} \sum_{l=1}^{n_{zone}} w_{X_k|_{\text{initial}}} [X_k(\mathbf{r}_{P_l}) - X_k(\mathbf{r}_{P_l})_{\text{initial}}] + \sum_{l=1}^{n_{zone}} w_{T|_{\text{initial}}} [T(\mathbf{r}_{P_l}) - T(\mathbf{r}_{P_l})_{\text{initial}}] \quad (4.30)$$

Discussion sur la limite de validité du modèle TLM : Le couplage que nous souhaitons mettre en oeuvre en utilisant une flamme à jets opposés de méthane ne devrait pas poser de gros problèmes de non-linéarité. Nous avons fait une étude de perturbation en températures et concentrations dans [de Guilhem de Lataillade... (2001)] qui a montré que pour des variations de 10 % en température ou concentrations dans les gammes qui sont les nôtres, le TLM conduit à de bons résultats pour un coût numérique incomparablement plus faible que ceux d'un Monte Carlo.

De manière générale, nous nous sommes assurés que l'approximation linéaire que nous faisons est largement suffisante pour la flamme que nous souhaitons modéliser. Il n'en reste pas

moins que de manière systématique, les résultats du TLM sont toujours confrontés à ceux d'un calcul complet par Monte Carlo pour des profils de flamme stationnaires. Une telle vérification sera exposée dans le Chap.6. Pour l'ensemble de nos simulations nous n'avons jamais été confrontés en pratique aux limites de validité du TLM.

En revanche, dans le cas général il serait nécessaire de mettre au point une procédure de contrôle systématique de l'écart à la linéarité. Un tel travail consisterait à calculer les expressions des termes du second ordre du TLM pour les utiliser comme critère d'arrêt du calcul linéaire. Ces écritures sont en cours d'étude au moment où nous écrivons ces lignes et elles dépassent le cadre que nous nous sommes fixés pour notre étude de couplage.

Chapitre 5

Densités de probabilité adaptées au problème de combustion

Nous avons annoncé au chapitre précédent l'ensemble de nos choix méthodologiques aboutissant à la description de notre algorithme de Monte Carlo. Nous avons vu que cet algorithme nécessitait le choix de lois de probabilités pour l'ensemble des variables du problème et que ces choix étaient déterminants pour assurer de bonnes qualités de convergence. Classiquement, une loi de probabilité s'établit en choisissant de dénombrer des cas favorables sur des cas possibles. L'objectif de ce chapitre est d'aborder ces choix sur la base d'analyses physiques et mathématiques permettant de cerner, pour chaque variable, les plages de variations essentielles vis à vis de la grandeur à estimer.

Le principal compromis à la base du choix d'une loi de probabilité sera d'inclure le plus grand nombre d'informations possible sur la contribution de la variable concernée, tout en restant mathématiquement suffisamment simple pour autoriser le développement d'algorithmes de génération aléatoire numériquement performants. Gagner en ajustement pour une densité de probabilité donnée permet de réduire la variance de la fonction à calculer (nous l'avons notée w au chapitre précédent), donc d'obtenir une estimation fiable de sa moyenne à partir d'un nombre réduit de générations aléatoires. Mais souvent un ajustement trop fin peut se traduire par une forte augmentation des temps de calcul nécessaires à chaque génération aléatoire et, malgré une convergence assurée par un plus faible nombre de tirages, le temps total de calcul peut être plus élevé.

Pour les configurations que nous étudions, la principale source de difficultés est associée à la dimension spectrale du problème. Tout d'abord, les spectres de raies font que la plage des épaisseurs optiques rencontrées est très large (centres de raies, ailes de raies), ce qui impose que la partie optico-géométrique de l'algorithme soit en mesure d'assurer une bonne convergence à toutes les épaisseurs optiques. De plus, la dépendance spectrale de la fonction à intégrer est très forte et il est essentiel de travailler finement à l'optimisation des lois de probabilité concernant cette dimension spectrale, à savoir les lois de tirages des bandes étroites, d'une part, et des coefficients d'absorption des gaz au sein de chaque bande, d'autre part.

5.1 Aspects optico-géométriques : problème de l'épaisseur optique

Au sein de cette section, notre problématique est celle de l'optimisation, en fonction de l'épaisseur optique, de l'algorithme de génération aléatoire des positions P_i et P_j au sein de chacun des deux éléments géométriques dont on veut estimer l'échange net d'énergie radiative. Cette problématique est identifiée dans la littérature à travers les difficultés reconnues de convergence de la méthode Monte Carlo à la limite optiquement épaisse. En général, les travaux concernant cette difficulté n'utilisent pas une formulation en PNE, mais simplement une formulation en flux direct. Comme cette question de formulation est relativement indépendante des questions purement optico-géométriques, et dans l'esprit de permettre un lien avec la littérature du domaine, nous aborderons cette question en abandonnant temporairement la formulation en PNE pour adopter une formulation dans laquelle on ne regarde que la puissance émise depuis le premier élément vers le second (sans sa réciproque). Cela revient en pratique dans l'**Eq.** 4.1 et l'**Eq.** 4.2 à remplacer la différence de luminance par la seule luminance au point P_i .

Dans les algorithmes de Monte Carlo les plus classiquement employés en rayonnement infrarouge, la position P_i dans l'élément géométrique "émetteur" est générée aléatoirement de façon uniforme. La position P_j dans l'élément géométrique "absorbant" quant à elle n'est pas générée au sein de C_j de façon directe. Pour chaque paquet de photons "émis" depuis P_i , le

tirage de la position d'absorption correspondante passe d'abord par le tirage d'une direction d'émission \mathbf{e}_Ω , qui définit un chemin optique. Le long de ce chemin optique, la position à laquelle le paquet de photons est "absorbé" est tirée aléatoirement selon la loi d'extinction du milieu et les propriétés d'absorption des parois rencontrées.

Avec un tel algorithme, lorsque le milieu est optiquement épais, les paquets de photons sont vite absorbés par la maille d'où ils ont été émis et participent très peu, voire pas du tout, aux échanges radiatifs.

Cela fait croître considérablement le nombre de réalisations avant d'atteindre la convergence. D'autre part, le coût numérique que provoquerait un découpage en volumes assez petits pour être optiquement fins, contraint à se limiter à des tailles géométriques où le problème de l'auto-absorption reste fortement présent et la question de la prise en compte du profil sous-maille de température devient essentielle. Cela est d'autant plus vrai pour les gaz où les raies spectrales produisent de grandes plages d'épaisseur optique. [Farmer... (1994a), Farmer... (1994b), Surzhikov... (1998)] proposent des solutions sur la base d'algorithmes hybrides combinant la méthode de Monte-Carlo et des algorithmes de diffusion mais la discontinuité des modèles qu'ils introduisent et le critère que ceux-ci nécessitent sont peu satisfaisants dans notre contexte.

Nous reprenons ci-dessous ce problème de la convergence des algorithmes de Monte Carlo à forte épaisseur optique en nous limitant tout d'abord à une géométrie plane monodimensionnelle. Nous montrons dans ce cadre (qui se prête à des solutions analytiques) comment la difficulté peut être contournée en modifiant le tirage de la position d'émission. Nous étendons ensuite l'algorithme proposé à une géométrie quelconque.

5.1.1 Géométrie plane

Nous nous proposons donc d'illustrer dans un cas simple le comportement de quatre statistiques différentes, dont celle que nous préconisons pour les milieux optiquement épais. Nous considérons donc une lame de gaz entre deux surfaces noires **Fig.** 5.1, avec un profil linéaire de luminance noire, que nous noterons $\mathbf{B}(\mathbf{z}) = \mathbf{B} + \frac{\Delta\mathbf{B}}{L}\mathbf{z}$ dans les calculs ($\Delta B = -B$ dans le cas de la **Fig.** 5.1). Pour simplifier notre démonstration nous allons nous limiter au calcul du flux radiatif émis du volume vers la face noire inférieure. En tout point on définit

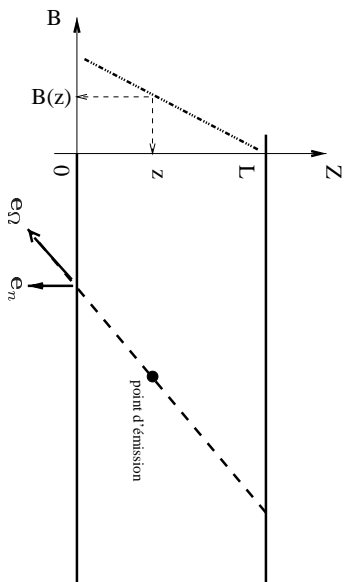


FIG. 5.1 – Lampe de gaz entre deux plans parallèles

la densité d'énergie spectrale directionnelle émise par unité de temps comme : $E = \kappa B(z)$

A chaque instant, cette quantité d'énergie est émise de tous les points du volume, puis les “photons” associés parcourent une distance variable (libre parcours) distribuée exponentiellement puis sont absorbés par le milieu ou par la paroi.

En se dominant des images au plus proche de cette description corpusculaire, avec un grand nombre de paquets de photons, on imagine qu'un de ces paquets est émis uniformément dans le volume, avec une direction équiprobable sur la sphère mais avec une longueur de parcours tirée selon la loi d'atténuation de Bouguer-Lambert. Synthétiquement, la formulation intégrale de la marche aléatoire d'un grand nombre de paquets de photons se met sous la forme suivante :

$$\varphi_{V \rightarrow S} = \int_0^L dz \, p(z) \int_{4\pi} d\Omega \, p(\Omega) \int_0^\infty d\sigma \, p(\sigma) \, (w)$$

où :

$$p(z) = \frac{1}{L}$$

$$p(\Omega) = \frac{1}{4\pi}$$

$$p(\sigma) = \kappa e^{-\kappa\sigma}$$

$$w = L 4\pi \kappa B S(z)$$

où $S(z)$ est une fonction qui vaut l'unité lorsque l'énergie atteint effectivement la paroi, c'est à dire que le libre parcours moyen tiré au hasard est plus long que la distance qui sépare la position initiale du paquet de photons et la paroi. Dans notre cas sans réflexion ni

diffusion, comme on considère le flux sur la face inférieure on peut intégrer sur une demi-sphère seulement :

$$\varphi_{V \rightarrow S} = \int_0^L dz p_1(z) \int_{2\pi} d\Omega p_1(\Omega) \int_0^\infty d\sigma p_1(\sigma) (w)$$

où :

$$\begin{aligned} p_1(z) &= \frac{1}{L} \\ p_1(\Omega) &= \frac{1}{2\pi} \\ p_1(\sigma) &= \kappa e^{-\kappa\sigma} \\ w_1 &= L2\pi\kappa BS(z) \end{aligned}$$

Par la suite on note formellement Θ l'ensemble des intégrations géométriques (spatiale et angulaire) ce qui permet, en accord avec la démarche de Monte Carlo, de présenter $\varphi_{V \rightarrow S}$ comme une moyenne pondérée de w_1 : $\varphi_{V \rightarrow S} = \langle w_1 \rangle_\Theta$

5.1.1.1 Algorithme 1 : Statistiques construites par analogie

On traduit directement la formulation intégrale précédente dans un algorithme de Monte Carlo en utilisant les lois de probabilités mises en évidence. Pour évaluer la performance de cette estimation statistique, nous nous permettons dans ce cas simple d'exprimer analytiquement¹ $\varphi_{V \rightarrow S}$.

$$\begin{aligned} \langle w_1 \rangle_\Theta &= \varphi_{V \rightarrow S} \\ &= \int_0^L dz p_1(z) \int_{2\pi} d\Omega p_1(\Omega) \int_0^\infty d\sigma p_1(\sigma) (w_1) \\ &= \int_0^L dz \frac{1}{L} \int_{2\pi} d\Omega \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty d\sigma \kappa e^{-\kappa\sigma} (2\kappa\pi B(z)LS(z)) \\ &= \int_0^L dz \frac{1}{L} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} d\theta \sin\theta \frac{1}{2\pi} \int_{\frac{z}{\cos\theta}}^\infty d\sigma \kappa e^{-\kappa\sigma} (2\kappa\pi \mathbf{B}(\mathbf{z})\mathbf{L}) \\ &= 2\pi(\mathbf{B}(\frac{1}{2} - \mathbf{E}_3(\kappa\mathbf{L})) + \frac{\Delta\mathbf{B}}{\kappa\mathbf{L}}(1/3 - \mathbf{E}_4(\kappa\mathbf{L}) - \kappa\mathbf{L}\mathbf{E}_3(\kappa\mathbf{L}))) \\ &= 2\pi B(1/2 - \frac{1}{3\kappa L} + \frac{1}{\kappa L}E_4(\kappa L)) \text{ si } \Delta B = -B \end{aligned}$$

¹Par la suite E_n fera référence aux fonctions intégrales exponentielles dont on trouvera un rappel en annexe 3

La moyenne de w_1^2 est également analytique, ce qui permet d'estimer l'incertitude statistique associée à cette formulation.

$$\begin{aligned}
\langle w_1^2 \rangle_\Theta &= 4\pi^2 (\mathbf{B}^2 (\frac{\kappa \mathbf{L}}{2} - \kappa \mathbf{L} \mathbf{E}_3(\kappa \mathbf{L})) + \mathbf{B} \Delta \mathbf{B} (-2\kappa \mathbf{L} \mathbf{E}_3(\kappa \mathbf{L}) - 2\mathbf{E}_4(\kappa \mathbf{L}) + \frac{2}{3}) \\
&\quad + \Delta \mathbf{B}^2 (-\kappa \mathbf{L} \mathbf{E}_3(\kappa \mathbf{L}) - 2\mathbf{E}_4(\kappa \mathbf{L}) - \frac{2}{\kappa \mathbf{L}} \mathbf{E}_5(\kappa \mathbf{L}) + \frac{2}{4\kappa \mathbf{L}})) \\
&= 4\pi^2 B^2 (\frac{\kappa L}{2} - \frac{2}{\kappa L} E_5(\kappa L) - \frac{2}{3} + \frac{1}{2\kappa L}) \quad si \quad \Delta B = -B
\end{aligned}$$

Pour atteindre une erreur relative fixée à 1%, le nombre de tirages nécessaires est alors donné par

$$N_1 = \left(\frac{1}{(\frac{1}{100})^2} \sqrt{\frac{\langle w_1^2 \rangle_\Theta}{\langle w_1 \rangle_\Theta^2} - 1} \right)$$

La **Fig. 5.2** montre le nombre de réalisations aléatoires attendues en fonction de l'épaisseur optique pour obtenir une erreur relative de 1%. A forte épaisseur optique, les photons sont vite réabsorbés par le gaz. Par conséquent, seule une très petite partie d'entre-eux, proches de la paroi, participe au flux $\varphi_{V \rightarrow S}$. La variance de l'estimateur Monte Carlo est donc élevée.

Cette explication peut conduire à croire que des algorithmes différents où le paquet de photon est atténué le long du chemin optique seraient d'un comportement statistique meilleur. C'est ce que nous allons tester dans l'algorithme suivant.

5.1.1.2 Algorithme 2 : Atténuation intégrée

Nous évaluons strictement la même intégrale que précédemment mais ce n'est qu'après avoir procédé à une première intégration sur les longueurs d'absorption que l'on désigne l'intégrant qui contient alors une information sur l'extinction exponentielle $e^{\frac{-\kappa z}{\cos \theta}}$ appliquée à

un “paquet de photons”.

$$\begin{aligned}
 \varphi_{V \rightarrow S} &= \int_0^L dz p_1(z) \int_{2\pi} d\Omega p_1(\Omega) \int_0^\infty d\sigma p_1(\sigma) (w_1) \\
 &= \int_0^L dz \frac{1}{L} \int_{2\pi} d\Omega \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty d\sigma \kappa e^{-\kappa\sigma} (2\kappa\pi B(z) L S(z)) \\
 &= \int_0^L dz \frac{1}{L} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} d\theta \sin\theta \frac{1}{2\pi} \int_{\frac{z}{\cos\theta}}^\infty d\sigma \kappa e^{-\kappa\sigma} (2\kappa\pi B(z) L) \\
 &= \int_0^L dz \frac{1}{L} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} d\theta \sin\theta \frac{1}{2\pi} (\kappa e^{\frac{-\kappa z}{\cos\theta}} 2\pi B(z) L) \\
 &= \int_0^L dz p_2(z) \int_{2\pi} d\Omega p_2(\Omega) (w_2) \\
 &= \langle w_2 \rangle_\Theta
 \end{aligned}$$

avec :

$$\begin{aligned}
 p_2(z) &= \frac{1}{L} \\
 p_2(\Omega) &= \frac{1}{2\pi} \\
 w_2 &= (\kappa e^{\frac{-\kappa z}{\cos\theta}} 2\pi B(z) L)
 \end{aligned}$$

L'intégrale de la fonction au carré est alors différente de la précédente puisque les statistiques sont changées. En jouant ainsi sur la formulation, à solution identique, on rend possible la réduction de la variance statistique :

$$\begin{aligned}
 \langle w_2^2 \rangle_\Theta &= 4\pi^2 (B^2(\frac{\kappa L}{4} - \frac{\kappa L}{2} E_3(2\kappa L)) + B\Delta B(-\kappa L E_3(2\kappa L) - \frac{1}{2} E_4(2\kappa L) + \frac{1}{6}) \\
 &\quad + \Delta B^2(\frac{-\kappa L}{2} E_3(2\kappa L) - \frac{1}{2} E_4(2\kappa L) - \frac{1}{4\kappa L} E_5(2\kappa L) + \frac{1}{16\kappa L})) \\
 &= 4\pi^2 B^2(\frac{\kappa L}{4} - \frac{1}{4\kappa L} E_5(2\kappa L) - \frac{1}{6} + \frac{1}{16\kappa L}) \quad si \quad \Delta B = -B
 \end{aligned}$$

Toujours pour une erreur relative fixée à 1%, le nombre de tirages nécessaires est donné par :

$$N_2 = \left(\frac{1}{(\frac{1}{100})^2} \sqrt{\frac{\langle w_2^2 \rangle_\Theta}{\langle w_2 \rangle_\Theta^2} - 1} \right)$$

On voit sur la **Fig. 5.2** que ce deuxième algorithme se comporte mieux, mais qu'il garde malgré tout les stigmates du comportement du précédent algorithme dont il est issu. La raison simple en est que, bien que l'auto-absorption complète ait été supprimée, il reste

cependant que seules les émissions pas trop éloignées de la paroi gardent un poids statistique important. Ainsi à forte épaisseur optique, l'atténuation étant très forte, la décroissance de l'énergie sur le chemin optique est si rapide qu'elle est très proche d'une absorption complète telle que nous l'avons employée dans le premier algorithme.

5.1.1.3 Algorithme 3 : Atténuation intégrée et optimisation des positions d'émission

Dans les deux algorithmes précédents, les difficultés sont clairement associées à la position du point d'émission. Ces difficultés peuvent être levées en modifiant la loi de probabilité de l'abscisse du point d'émission $p_2(z)$. L'optimisation de l'abscisse z dépend fortement de l'inclinaison du rayon par rapport à la paroi (rasant ou pas). Pour une même position de départ l'atténuation peut en effet être beaucoup plus forte pour un rayon rasant que pour un rayon perpendiculaire à la surface de sortie. Par conséquent, nous choisissons d'inverser les intégrales d'angle solide et de position et donc de générer la direction de propagation avant l'abscisse du point d'émission. Le vecteur \mathbf{e}_Ω est d'abord généré puis, une loi de tirage adaptée de z peut être choisie. Voici son expression :

$$p_3(z; \theta) = \frac{\frac{\kappa}{\cos(\theta)} \exp\left(-\frac{\kappa z}{\theta}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{\kappa L}{\theta}\right)}$$

De façon à assurer une bonne convergence dans la limite optiquement épaisse, nous modifions également la densité de probabilité angulaire en choisissant une distribution lambertienne.

$$p_3(\Omega) = \frac{\cos(\theta)}{\pi}$$

On aboutit ainsi à l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \varphi_{V \rightarrow S} &= \int_0^L dz \, p_2(z) \int_{2\pi} d\Omega \, p_2(\Omega) \, (w_2) \\ &= \int_0^L dz \, \frac{1}{L} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} d\theta \sin\theta \, \frac{1}{2\pi} (\kappa e^{\frac{-\kappa z}{\cos\theta}} 2\pi B(z)L) \\ &= \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} d\theta \sin\theta \, \frac{\cos\theta}{\pi} \int_0^L dz \, \frac{\frac{\kappa}{\cos\theta} e^{\frac{-\kappa}{\cos\theta} z}}{1 - e^{\frac{-\kappa L}{\cos\theta}}} ((1 - e^{\frac{-\kappa L}{\cos\theta}}) \pi \mathbf{B}(\mathbf{z})) \\ &= \int_{2\pi} d\Omega \, p_3(\Omega) \int_0^L dz \, p_3(z; \theta) \, (w_3) \\ &= < w_3 >_\Theta \end{aligned}$$

avec :

$$w_3 = (1 - e^{\frac{-\kappa L}{\cos \theta}}) \pi B(z)$$

La moyenne des carrés vaut alors :

$$\begin{aligned} \langle w_3^2 \rangle_{\Theta} &= 2\pi^2 \left(\frac{1}{2} B^2 - 2 B^2 \text{Ei}(3, \kappa L) + 2 \frac{B \Delta B (\frac{1}{3} - \text{Ei}(4, \kappa L) - \kappa L \text{Ei}(3, \kappa L))}{\kappa L} \right. \\ &\quad + \frac{\Delta B^2 (-\kappa L^2 \text{Ei}(3, \kappa L) - 2 \kappa L \text{Ei}(4, \kappa L) - 2 \text{Ei}(5, \kappa L) + \frac{1}{2})}{\kappa L^2} + B^2 \text{Ei}(3, 2 \kappa L) \\ &\quad - 2 \frac{B \Delta B (-\kappa L \text{Ei}(3, 2 \kappa L) - \text{Ei}(4, 2 \kappa L) + \text{Ei}(4, \kappa L))}{\kappa L} \\ &\quad \left. - \frac{\Delta B^2 (-\kappa L^2 \text{Ei}(3, 2 \kappa L) - 2 \kappa L \text{Ei}(4, 2 \kappa L) - 2 \text{Ei}(5, 2 \kappa L) + 2 \text{Ei}(5, \kappa L))}{\kappa L^2} \right) \\ &= 4\pi^2 B^2 \left(\frac{1}{4} - \frac{1}{3\kappa L} + \frac{1}{4(\kappa L)^2} - \frac{2}{\kappa^2 L^2} E_5(\kappa L) - E_3(\kappa L)/2 \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{\kappa L} E_4(\kappa L) + \frac{1}{\kappa^2 L^2} E_5(2\kappa L) \right) \text{ si } \Delta B = -B \end{aligned}$$

et on a toujours pour une erreur relative fixée à 1% :

$$N_3 = \left(\frac{1}{(\frac{1}{100})^2} \sqrt{\frac{\langle w_3^2 \rangle_{\Theta}}{\langle w_3 \rangle_{\Theta}^2} - 1} \right)$$

Nous avons avec le troisième algorithme (**Fig. 5.2**) gagné en précision pour les fortes épaisseurs optiques. Il faut cependant modérer ce résultat en constatant que, pour de faibles épaisseurs optiques, les performances sont moins bonnes que dans les deux cas précédents. C'est un résultat qui se comprend dès lors qu'on a présent à l'esprit que la loi de tirage angulaire a été changée par celle de Lambert dans le dernier algorithme. Les directions vers l'avant sont donc privilégiées, et ce qui est un avantage à forte épaisseur optique devient un inconvénient dès lors que le milieu est optiquement mince et que l'on parcourt de faibles distances dans chaque maille de volume. L'ajustement de la loi de tirage angulaire en fonction de l'épaisseur optique devient une nécessité. C'est ce dernier travail que nous abordons dans le § suivant.

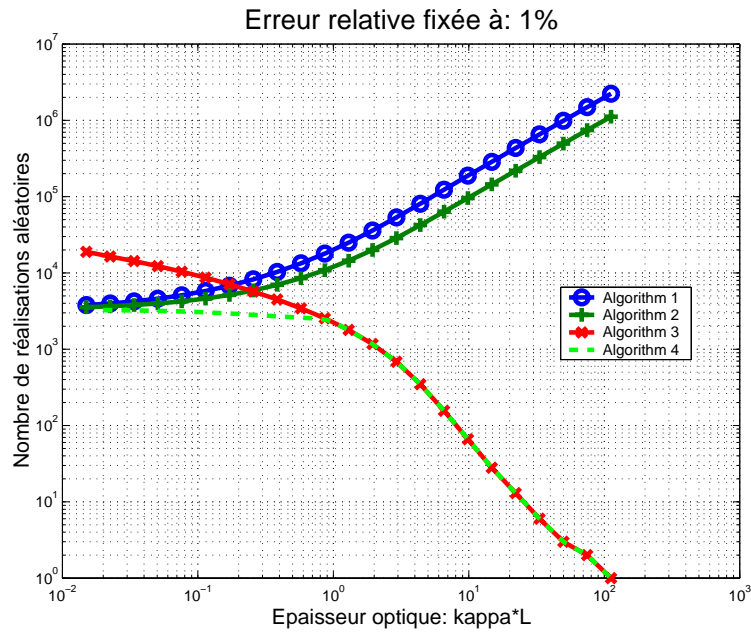


FIG. 5.2 – Nombre de réalisations aléatoires nécessaire en fonction de l'épaisseur optique pour obtenir une erreur relative de 1 %

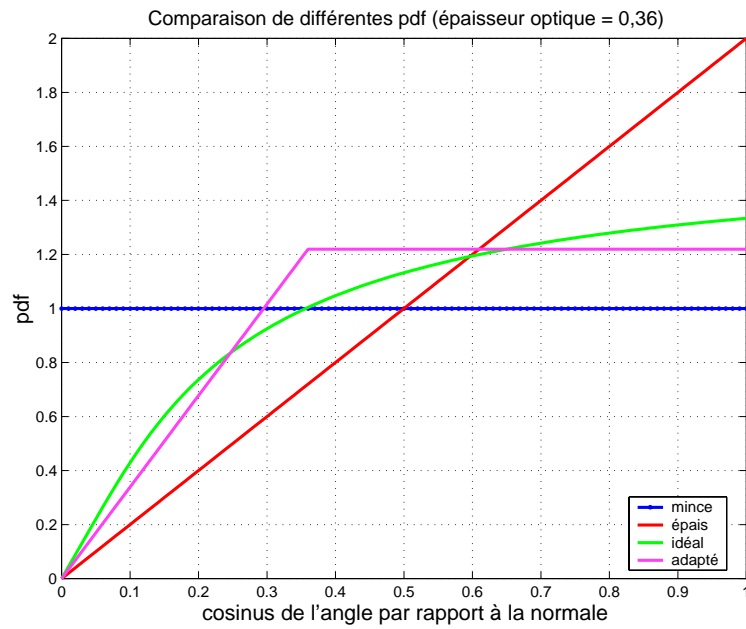


FIG. 5.3 – Fonctions densité de probabilité (pdf) pour les tirages angulaires

5.1.1.4 Algorithme 4 : Atténuation intégrée et optimisation des positions et angles d'émission

Pour ajuster la loi de tirage angulaire, nous raisonnons sur la base de l'émission d'une couche homogène. Sous cette hypothèse ($\Delta B = 0$) l'expression w_3 (qui a été obtenu sur la base d'une distribution angulaire lambertienne) est uniquement dépendant du cosinus de l'angle d'émission :

$$w_3 = (1 - \exp \frac{-\kappa L}{\cos(\theta)})\pi B$$

On retrouve que le choix d'un tirage lambertien permet d'assurer une très faible variance à la limite optiquement épaisse. En effet,

$$\lim_{\kappa L \rightarrow +\infty} (w_3) = \pi B$$

d'où

$$\lim_{\kappa L \rightarrow +\infty} (< w_3^2 > - < w_3 >^2) = 0$$

Ce n'est au contraire pas le cas à faible épaisseur optique étant donné que w_3 tend vers $\frac{-\kappa L}{\cos(\theta)}\pi B$ lorsque κL tend vers 0. Une adaptation est alors possible en choisissant une densité de probabilité isotrope pour le tirage angulaire. En effet, si on choisit $p(\Omega) = \frac{1}{2\pi}$, on aboutit à :

$$w = 2\cos(\theta)(1 - \exp(\frac{-\kappa L}{\cos(\theta)}))\pi B$$

avec

$$\lim_{\kappa L \rightarrow 0} (w) = 2\kappa L\pi B$$

et la variance du calcul Monte Carlo est donc nulle à la limite mince.

On voit que nous disposons de deux densités de probabilité adaptées pour les limites épaisse et mince respectivement. Nous avons alors cherché à définir une densité de probabilité adaptée en fonction de l'épaisseur optique du système, passant régulièrement d'une distribution uniforme à une distribution lambertienne. La distribution que nous avons retenue est définie par morceau (**Fig. 5.3**) :

- uniforme sur la plage angulaire correspondant aux rayons qui traversent le système sous des épaisseurs optiques faibles ($\frac{\kappa L}{\cos(\theta)} < 1$) ;
- lambertienne sur la plage angulaire correspondant aux rayons qui traversent le système sous des épaisseurs optiques fortes ($\frac{\kappa L}{\cos(\theta)} > 1$).

Cela conduit à la définition suivante, dans laquelle on peut noter que l'on retrouve exactement la distribution lambertienne pour les systèmes d'épaisseur optique caractéristique supérieure à l'unité :

$$p^a(\Omega; \mathbf{e}_n, \kappa L) = \alpha \frac{\cos \theta}{\pi} \text{ si } \cos(\theta) < \kappa L \quad (5.1)$$

$$p^a(\Omega; \mathbf{e}_n, \kappa L) = \beta \frac{1}{2\pi} \text{ si } \cos(\theta) > \kappa L$$

avec

$$\alpha = 1 \text{ si } \kappa L > 1$$

et

$$\beta = \frac{1}{1 - \kappa L/2}$$

$$\alpha = \frac{\beta}{2\kappa L} \text{ si } \kappa L < 1$$

En reportant cette nouvelle densité de probabilité dans l'équation de l'algorithme 3 (page 106), et en conservant la densité de probabilité spatiale précédente, on obtient :

$$\begin{aligned} \varphi_{V \rightarrow S} &= \int_{2\pi} d\Omega \, p_4(\Omega) \int_0^L dz \, p_4(z; \theta) \, (w_4) \\ &= \langle w_4 \rangle_{\Theta} \end{aligned}$$

avec

$$w_4 = w_3 \frac{p_3(\Omega)}{p_4(\Omega)}$$

$$p_4(\Omega) = p^a(\Omega; \mathbf{e}_n, \kappa L)$$

$$p_4(z) = p_3(z)$$

Comme précédemment les qualités d'adaptation de cette densité de probabilité sont illustrées dans la **Fig. 5.2**, en terme de tirages nécessaires pour atteindre une précision de 1% par comparaison avec les trois précédents algorithmes. On retrouve qu'aux épaisseurs optiques supérieures à l'unité, les résultats de ce nouvel algorithme coïncident avec ceux obtenus sur une base lambertienne. De même, à la limite mince, on retrouve les résultats d'un tirage angulaire uniforme. Par contre, les résultats sont améliorés pour les épaisseurs optiques intermédiaires.

5.1.2 Géométrie quelconque

L'algorithme précédemment développé en 1-D peut se généraliser pour une géométrie quelconque. Pour être tout à fait général, nous reprenons également la formulation en puissances nettes échangées que nous avons abandonnée seulement pour les besoins de la démonstration précédente. Imaginons que le système soit divisé en n_v volumes V_i et n_s surfaces opaques S_i . Une remarque essentielle est que les éléments géométriques ne sont pas isothermes ni optiquement minces. La température est décrite de manière continue sur chaque éléments et il lui correspond un champ de luminance noire $L_{b,\eta}(\vec{x})$, en notant \vec{x} le vecteur position au sein de l'élément.

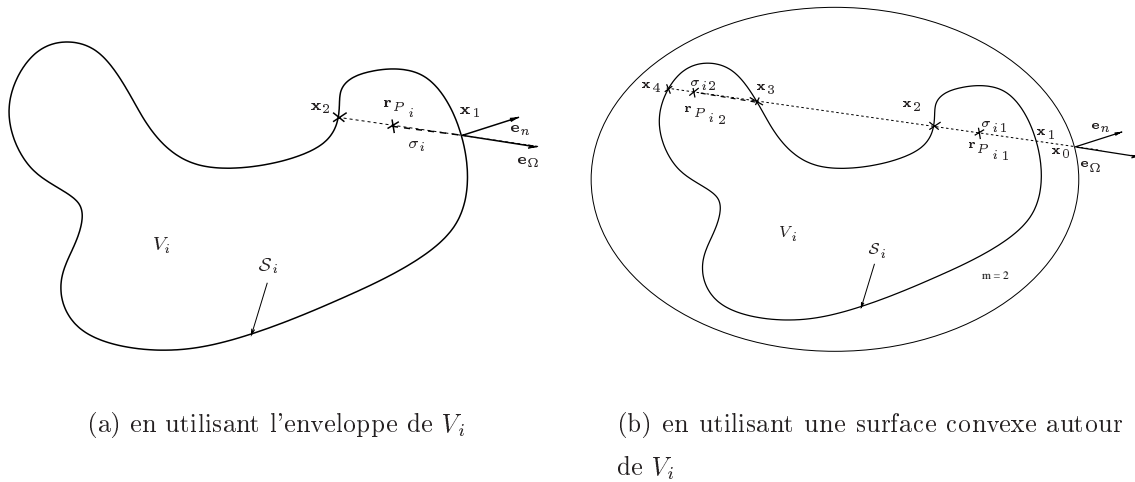


FIG. 5.4 – Génération aléatoire de la position d'émission

Au moment du calcul d'un échange radiatif net entre un volume et une surface $\varphi_{V_i \leftrightarrow S_j}$ ou entre deux éléments de volume $\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j}$, la première étape consiste à générer aléatoirement une position initiale P_i dans V_i et une direction \mathbf{e}_Ω . L'extension la plus directe de l'algorithme 4 à trois dimensions se réduit à la procédure suivante (Voir **Fig. 5.4** a et b) :

1. une position \mathbf{x}_1 est uniformément générée sur l'enveloppe du volume V_i notée \mathcal{S}_i .
2. une direction sortante \mathbf{e}_Ω est générée à son tour selon la distribution $p^a(\mathbf{e}_\Omega; \mathbf{e}_{n1}, \kappa d)$ (**Eq. 5.1**) où \mathbf{e}_{n1} est le vecteur normal à la surface orienté selon la convention de la normale sortante, et où d est une dimension caractéristique du volume V_i
3. \mathbf{x}_1 et \mathbf{e}_Ω sont utilisés pour définir, par intersection entre le rayon lumineux qu'ils

définissent et le volume V_i , un segment de longueur L repéré en ses extrémités par \mathbf{x}_1 et \mathbf{x}_2 . La position \mathbf{x}_2 désigne par convention la première interception que l'on rencontre entre l'enveloppe du volume V_i et la droite passant par \mathbf{x}_1 dans la direction $-\mathbf{e}_\Omega$.

4. La position $\mathbf{r}_{P_i} = \mathbf{x}_1 - \sigma \mathbf{e}_\Omega$ (où σ désigne l'abscisse curviligne) peut alors être générée aléatoirement le long du segment de longueur L conformément à la distribution exponentielle :

$$p(\sigma_i) = \frac{\kappa e^{-\kappa \sigma_i}}{1 - e^{-\kappa \|\mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1\|}} \quad (5.2)$$

Il arrive que pour des géométries complexes, la génération d'un point \mathbf{x}_1 sur l'enveloppe du volume devienne lourde. Sans rentrer dans des développements géométriques complexes, on indique ici la possibilité d'utiliser une alternative en utilisant une enveloppe convexe autour du volume V_i telle qu'elle est représentée **Fig. 5.4 b** [de Lataillade... (2001)].

A cette étape le chemin optique est initié par une position \mathbf{r}_{P_i} et une direction \mathbf{e}_Ω . Lorsque l'on calcule un échange net $\varphi_{V_i \leftrightarrow S_j}$, ces données sont suffisantes et \mathbf{r}_{P_j} est défini

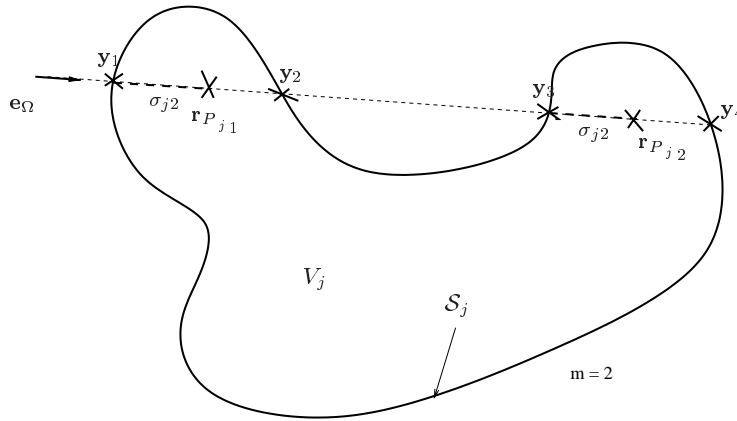


FIG. 5.5 – Génération aléatoire de la position d'absorption

par l'intersection entre la demi-droite $(\mathbf{r}_{P_i}, \mathbf{e}_\Omega)$ et la surface S_j . Lorsque l'on calcule un échange net $\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j}$, on suit la demi-droite $(\mathbf{r}_{P_i}, \mathbf{e}_\Omega)$ de façon à déterminer son intersection avec le volume V_j . Cette intersection est potentiellement composée de m segments dont les extrémités sont repérées par les vecteurs \mathbf{y}_{2l-1} et \mathbf{y}_{2l} avec $l = 1 \dots m$ (Voir **Fig. 5.5**). Pour optimiser la procédure de calcul, plutôt que de tirer aléatoirement une position \mathbf{r}_{P_j} unique sur l'union des m segments, nous préférons générer une position $\mathbf{r}_{P_{j_l}}$ dans chaque segment

et nous sommions les contributions correspondantes. De même que nous le pratiquons pour le point initial, la loi de probabilité utilisée pour chacun de ces tirages intègre la physique d'atténuation exponentielle au sein de la maille :

$$p(\sigma_{jl}) = \frac{\kappa e^{-\kappa \sigma_{jl}}}{1 - e^{-\kappa \|\mathbf{y}_{2l} - \mathbf{y}_{2l-1}\|}} \quad (5.3)$$

avec, $\mathbf{r}_{P_{jl}} = \mathbf{y}_{2l-1} + \sigma_{jl} \mathbf{e}_\Omega$. Lorsque l'on calcule $\varphi_{S_i \leftrightarrow S_j}$ ou $\varphi_{S_i \leftrightarrow V_j}$ tout est identique à la différence que la position initiale est générée uniformément sur la surface et que la probabilité angulaire est $p^a(\Omega; \mathbf{e}_n, \kappa D)$ où D est une dimension caractéristique du système.

5.2 Aspects spectraux

5.2.1 Pondération des bandes étroites

D'un point de vue spectral, l'algorithme que nous proposons passe tout d'abord par la génération aléatoire d'une bande étroite parmi les 367 bandes qui nous servent à couvrir le spectre infrarouge. Comme pour l'ensemble des lois de tirage, le choix de cette probabilité n'affecte pas le résultat final mais uniquement la rapidité de convergence.

Associer un jeu de probabilités à l'ensemble des bandes, c'est pour nous essayer de prévoir le poids relatif de la contribution de chaque bande à la PNE considérée. Pour cela, nous nous appuyons sur des modèles approchés séparés des termes optiques et énergétiques de l'**Eq. 4.1**. Dans notre algorithme, chaque rayon suivi sert à l'estimation des PNE entre la maille de départ et chacune des mailles traversées ; nous construisons ces modèles approchés en songeant au bilan radiatif total de la maille de départ, c'est à dire à la PNE entre la maille de départ et tout le reste du système.

Pour ce qui concerne la partie énergétique, donc la différence de luminance noire, nous souhaitons prendre un $\Delta \overline{L}_b$ typique de l'échange net entre l'élément où on se trouve et le reste du système. Face à cet objectif, lors de travaux sur des cavités quasi-isothermes [Cherkaoui... (1996), Cherkaoui... (1998), Clergent (2000)] ont choisi de représenter cette différence de luminance à partir de la dérivée partielle de la luminance noire en P_i par rapport à la température. Dans notre contexte, cette solution n'est pas réaliste du fait des hétérogénéités thermiques des systèmes de combustion. Nous avons alors choisi d'utiliser la différence

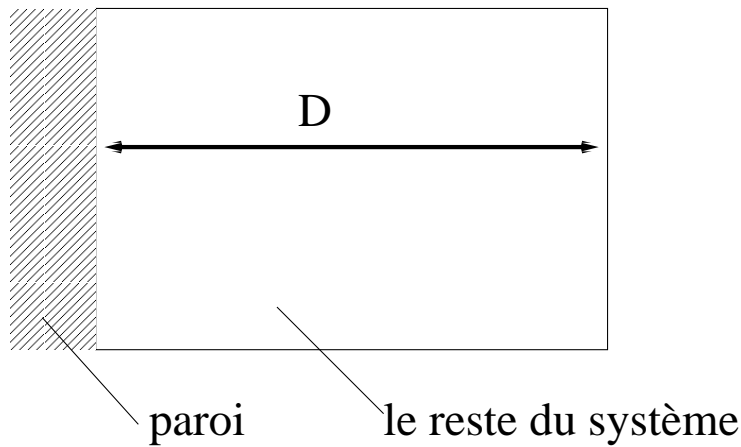


FIG. 5.6 – Echange entre une paroi et le système

maximale de luminance, à savoir :

$$\Delta \overline{L}_b = \max[(\overline{L}_{b,\eta}(\mathbf{r}_{P_i}) - \overline{L}_b(T_{min})) , (\overline{L}_b(\mathbf{r}_{P_i}) - \overline{L}_{b,\eta}(T_{max}))]$$

où T_{min} et T_{max} sont respectivement les températures maximale et minimale du système.

Pour l'estimation de la partie optique, il faut distinguer la physique d'émission des parois et des mailles de gaz :

- Pour une paroi, toutes les bandes sont représentées à l'émission. Le rayonnement d'une partie d'entre elles sera atténué par les gaz. Les autres pourront parcourir de plus grandes distances. Une paroi échange donc avec l'ensemble du système sur de grandes distances. Dans les systèmes de combustion, les parois sont souvent à des températures faibles devant celles des gaz. Ces parois échangent donc principalement par rayonnement avec le volume de gaz chaud et très peu entre elles. Dans notre pondération des bandes étroites, nous n'utiliserons comme terme optique que l'échange avec le gaz. Pour cela, nous introduisons une distance D caractéristique de la dimension du volume de gaz tel qu'il est perçu depuis P_i (**Fig. 5.6**) et le terme de pondération est calculé en supposant un échange avec un volume isotherme, soit $(1 - \overline{\tau}(D))$ où $\overline{\tau}$ est le produit des transmittivités moyennes de chacun des constituants.
- Pour un volume d'émission, les distances caractéristiques sont plus courtes puisque le rayonnement va être absorbé sur des fréquences où il a été émis. En notant d une distance caractéristique de l'épaisseur de la maille, et en considérant ici l'ensemble des

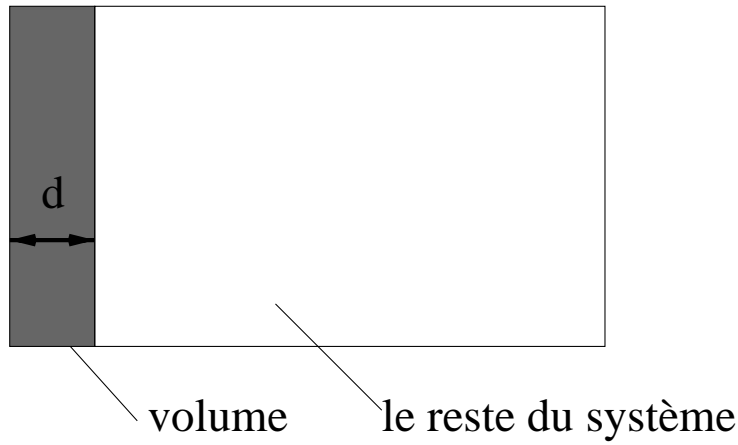


FIG. 5.7 – Echange entre un volume et le système

échanges radiatifs (gaz/paroi et gaz/gaz), la partie optique de l'échange net devient, toujours en considérant l'échange avec un milieu extérieur isotherme : $(1 - \bar{\tau}(d))$.

Donc, lorsque sont identifiées les dimensions caractéristiques d ou D , nous retenons dans les deux cas, pour chaque bande étroite, la pondération suivante :

$$F = \left[1 - \bar{\tau}^{h2o}(L) \bar{\tau}^{co2}(L) \bar{\tau}^{co}(L) \bar{\tau}^s(L) \right] \max[(\bar{L}_b(\mathbf{r}_{P_i}) - \bar{L}_b(T_{min})) , (\bar{L}_b(\mathbf{r}_{P_i}) - \bar{L}_b(T_{max}))] \quad (5.4)$$

avec : $L = D$ pour une émission de paroi **Fig.** 5.6 et $L = d$ pour une émission de volume **Fig.** 5.7. La probabilité utilisée pour le tirage d'une bande étroite n est alors :

$$p_n = \frac{F_n}{\sum_{n=1}^{n_b} F_n} \quad (5.5)$$

Pour illustrer la pertinence de notre analyse, à partir du modèle de flamme que nous détaillerons au chapitre suivant, nous avons reporté **Fig.** 5.8 la loi de probabilité issue des discussions précédentes et la répartition du bilan radiatif sur les bandes étroites telle qu'elle ressort lors d'une simulation par la méthode de Monte-Carlo. Bien que relativement grossière, notre loi reproduit très bien la statistique sous-jacente à notre problème de combustion. La raison de ce très bon accord est à trouver dans la faible épaisseur optique de la flamme considérée, parce que les raisonnements précédents sont exacts à la limite mince. Néanmoins, la généralité des analyses physiques qui ont conduit à ce résultat nous permet d'accorder une bonne assurance dans l'aptitude de cette loi de probabilité à assurer une bonne qualité de convergence pour de nombreux problèmes de combustion.

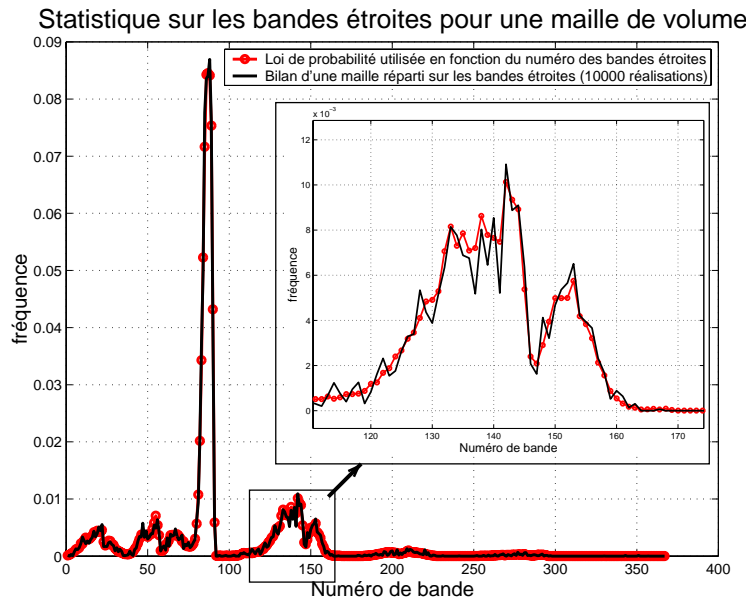


FIG. 5.8 – Comparaison entre la densité de probabilité utilisée et la densité de probabilité idéale pour le tirage des bandes étroites

5.2.2 Densité de probabilité du coefficient d'absorption

Pour l'optimisation des lois de tirage des coefficients d'absorption, nous raisonnons sur la même base schématique que précédemment pour le tirage des bandes. À savoir, un volume d'épaisseur d échangeant avec un système total extérieur isotherme (pour les émissions de volume, **Fig.** 5.7), ou bien une paroi échangeant avec un volume isotherme d'épaisseur D (pour les émissions de surface, **Fig.** 5.6).

Du fait du modèle physique employé, il apparaît déjà explicitement un jeu de densités de probabilité, dans la formulation intégrale de départ, pour chacun des gaz du mélange. Il s'agit des k-distributions $f_M^{h_2o}$, $f_M^{co_2}$ et f_M^{co} qui apparaissent dans les équations (Eq. 4.26)².

²En pratique, les questions d'hétérogénéité font que ces fonctions ne sont pas appliquées au coefficient d'absorption local κ mais à la variable $a = \kappa/\bar{\kappa}$ qui est la grandeur conservée le long du chemin optique. Pour ce qui nous concerne ici, les écritures en κ et en a sont équivalentes étant donné que la k-distribution du modèle de Malkmus vérifie

$$f_M(\kappa; \bar{\kappa}, \phi) d\kappa = f_M(a; 1, \phi) da$$

Pour des raisons de clarté de l'exposé, nous choisissons de raisonner en κ pour la discussion des lois de tirage.

Cependant ces densités de probabilité ne sont pas toujours les mieux adaptées pour le tirage des valeurs de κ puisque l'intégrant se compose parfois d'un pré-facteur κ ou κ^2 et d'une atténuation exponentielle $e^{-\kappa l}$ (**Eq. 4.2**). Il peut alors être judicieux d'utiliser pour le tirage de κ une fonction adaptée $f_m(\kappa; l)$ [Dufresne... (1999)] où m prend les valeurs 0, 1 ou 2 respectivement pour des échanges entre éléments infinitésimaux, surface-surface, volume-surface ou volume-volume, séparés d'une distance l :

$$f_m(\kappa; l) = \partial_\kappa \left(\frac{1}{\overline{\varphi}_m} \int_0^\kappa du u^m e^{-ul} f(u) \right) \quad (5.6)$$

avec :

$$\overline{\varphi}_m = \int_0^\infty d\eta \kappa^m e^{-\kappa l} f(\kappa) \quad (5.7)$$

Pour le modèle de Malkmus, les fonction $f_m(\kappa; l)$ sont reliées directement à des distributions inverses gaussiennes, ce qui permet une procédure d'échantillonnage analytique (sauf pour f_2) dont on pourra retrouver les détails dans [Dufresne... (1999)] ou bien dans l'annexe 3. On peut retenir ici que f_m peut se réécrire plus simplement :

$$\begin{aligned} - f_0 &= \frac{1}{\overline{\tau}(l)} e^{-\kappa l} f(\kappa) \\ - f_1 &= \frac{-1}{\partial_l \overline{\tau}(l)} \kappa e^{-\kappa l} f(\kappa) \\ - f_2 &= \frac{1}{\partial_l^2 \overline{\tau}(l)} \kappa^2 e^{-\kappa l} f(\kappa) \end{aligned}$$

Nous aurons également besoin de définir les fonctions de répartition associées à chacune de ces densités de probabilité :

$$g_m(\kappa; l) = \int_0^\kappa d\kappa' f_m(\kappa'; l)$$

Si ces densités de probabilité sont parfaitement adaptées pour les échanges entre éléments infinitésimaux il reste encore une étape à franchir pour traiter des volumes ou des surfaces réelles. Ce qui était justifié pour des volumes élémentaires reste valable dans le cas où les volumes sont optiquement minces. Lorsqu'un volume est optiquement épais il peut -être assimilé à une surface noire. Ce qui permet de se ramener à un problème connu. Dans le cas d'un volume d'épaisseur optique intermédiaire, nous avons choisi d'utiliser des fonctions pondérées des distributions f_m . Pour un volume de dimension L échangeant avec une surface qui se trouve à une distance l , nous introduisons une densité de probabilité adaptée d'expression :

$$f^a(\kappa; l) = \alpha f_1(\kappa; l) + (1 - \alpha) f_0(\kappa; l) \quad (5.8)$$

Le coefficient $\alpha \in [0, 1]$ "mesure" si on se rapproche d'avantage d'un volume épais ($\alpha = 0$) ou d'un volume optiquement mince ($\alpha = 1$). On choisit alors de fixer la limite entre les

valeurs de κ correspondant à des cas minces et épais par un coefficient d'absorption critique κ_c vérifiant $\kappa_c L = 1$. On fixe alors α à partir de la somme des contributions relatives des κ mince et épais :

$$\begin{aligned}
 \alpha &= \frac{\int_0^{\kappa_c} d\kappa f(\kappa) \int_0^L dx \kappa e^{-\kappa(l+x)}}{\int_0^\infty d\kappa f(\kappa) \int_0^L dx \kappa e^{-\kappa(l+x)}} \\
 &= \frac{\int_0^{\kappa_c} d\kappa f(\kappa) [1 - e^{-\kappa L}] e^{-\kappa l}}{\int_0^\infty d\kappa f(\kappa) [1 - e^{-\kappa L}] e^{-\kappa l}} \\
 &= \frac{\bar{\tau}(l) g_0(\kappa_c; l) - \bar{\tau}(l+L) g_0(\kappa_c; l+L)}{\bar{\tau}(l) - \bar{\tau}(l+L)}
 \end{aligned} \tag{5.9}$$

Dans notre algorithme, étant donné les représentations associées que nous nous sommes fixées (**Fig. 5.6** et **Fig. 5.7**), que la position initiale P_i soit dans une maille de volume ($L = d$) ou bien sur une paroi ($L = D$), α peut-être calculé analytiquement pour $l = 0$ (aucune distance intermédiaire) et $f^a(\kappa; 0)$ permet d'ajuster au mieux le tirage du coefficient d'absorption κ .

L'ensemble du raisonnement précédent n'est cependant valable que pour un gaz unique. L'optimisation des fonctions densités de probabilité du coefficient d'absorption nécessite une dernière série de calculs pour tenir compte du mélange de plusieurs gaz et de suies. Pour simplifier, commençons par de la suie mêlée à un seul gaz. Il y a deux éléments à modifier :

- le coefficient d'absorption critique qui devient $\kappa_c = \frac{1}{L} - \kappa^s$
- le calcul du coefficient de pondération α qui va venir modifier la loi de probabilité pour le coefficient d'absorption du gaz

Reprenons les calculs précédents en remplaçant κ par $(\kappa^g + \kappa^s)$ qui désignent respectivement les coefficients d'absorption du gaz et de la suie. L'astuce dans les calculs suivants consiste à mettre en facteur les parties qui dépendent du coefficient d'absorption des suies (en caractères gras).

$$\begin{aligned}
 \alpha &= \frac{\int_0^{\kappa_c} d\kappa^g f(\kappa^g) [1 - e^{-\kappa^g L} e^{-\kappa^s L}] e^{-\kappa^g l}}{\int_0^\infty d\kappa^g f(\kappa^g) [1 - e^{-\kappa^g L} e^{-\kappa^s L}] e^{-\kappa^g l}} \\
 &= \frac{\int_0^{\kappa_c} d\kappa^g f(\kappa^g) e^{-\kappa^g l} - \mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \int_0^{\kappa_c} d\kappa^g f(\kappa^g) e^{-\kappa^g (L+l)}}{\bar{\tau}(l) - \mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \bar{\tau}(L+l)} \\
 &= \frac{\bar{\tau}(l) g_0(\kappa_c; l) - \mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \bar{\tau}(l+L) g_0(\kappa_c; l+L)}{\bar{\tau}(l) - \mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \bar{\tau}(L+l)}
 \end{aligned} \tag{5.10}$$

La généralisation à trois gaz se fait sur les mêmes principes. On aura trois fonctions adaptées, chacune pour un gaz. Il faudra alors exprimer trois coefficients α_1 , α_2 et α_3 respectivement

pour les gaz 1, 2 et 3. Pour un gaz donné, l'expression de α doit laisser libre le coefficient d'absorption du gaz. Les deux autres coefficients d'absorption sont alors “verrouillés”. Cela s'effectue différemment pour les deux conditions suivantes :

- si un des coefficients d'absorption qui doit être “verrouillé” n'est pas connu, alors il faut effectuer une intégration sur ce dernier pour exprimer α avec la transmittivité moyenne qui lui est associée.
- si un des coefficients d'absorption qui doit être “verrouillé” est connu, alors il est possible d'en utiliser directement la valeur.

Tout calcul fait on trouve pour le :

- premier gaz : $\kappa_{c1} = \frac{1}{L} - \kappa^s - \left(\frac{-\log \bar{\tau}_2(L)}{L}\right) - \left(\frac{-\log \bar{\tau}_3(L)}{L}\right)$ avec pour expression du coefficient de pondération :

$$\alpha_1(L, l) = \frac{\bar{\tau}(l)g_0(\kappa_{c1}; l) - \left(\mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \bar{\tau}_2(\mathbf{L}) \bar{\tau}_3(\mathbf{L})\right) \bar{\tau}(l+L)g_0(\kappa_{c1}; l+L)}{\bar{\tau}(l) - \left(\mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \bar{\tau}_2(\mathbf{L}) \bar{\tau}_3(\mathbf{L})\right) \bar{\tau}(L+l)} \quad (5.11)$$

- deuxième gaz : $\kappa_{c2} = \frac{1}{L} - \kappa^s - \kappa_1 - \left(\frac{-\log \bar{\tau}_3(L)}{L}\right)$ avec pour expression du coefficient de pondération :

$$\alpha_2(L, l) = \frac{\bar{\tau}(l)g_0(\kappa_{c2}; l) - \left(\mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \mathbf{e}^{-\kappa_1 \mathbf{L}} \bar{\tau}_3(\mathbf{L})\right) \bar{\tau}(l+L)g_0(\kappa_{c2}; l+L)}{\bar{\tau}(l) - \left(\mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \mathbf{e}^{-\kappa_1 \mathbf{L}} \bar{\tau}_3(\mathbf{L})\right) \bar{\tau}(L+l)} \quad (5.12)$$

- troisième gaz : $\kappa_{c3} = \frac{1}{L} - \kappa^s - \kappa_1 - \kappa_2$ avec pour expression du coefficient de pondération :

$$\alpha_3(L, l) = \frac{\bar{\tau}(l)g_0(\kappa_{c3}; l) - \left(\mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \mathbf{e}^{-(\kappa_1 + \kappa_2) \mathbf{L}}\right) \bar{\tau}(l+L)g_0(\kappa_{c3}; l+L)}{\bar{\tau}(l) - \left(\mathbf{e}^{-\kappa^s \mathbf{L}} \mathbf{e}^{-(\kappa_1 + \kappa_2) \mathbf{L}}\right) \bar{\tau}(L+l)} \quad (5.13)$$

Ici encore, pour l'algorithme tel que nous l'avons mis en oeuvre, α_1 , α_2 et α_3 sont utilisés avec $l = 0$ et $L = D$ ou $L = d$ selon la position initiale.

Le travail d'optimisation sur les coefficients d'absorption aurait pu à lui tout seul constituer un chapitre. Nous avons volontairement réduit la discussion aux points essentiels. Dans [Dufresne... (1999)] on pourra retrouver de manière complète les discussions concernant une seule espèce gazeuse. Pour les mélanges, il n'y a pas de remarque physique fondamentalement différente.

5.3 Synthèse algorithmique

Dans ce chapitre, nous avons jusqu'ici présenté nos suggestions quant à l'ensemble des générations aléatoires requises pour la mise en oeuvre de l'algorithme de Monte Carlo proposé au § 4.3.2; à savoir le tirage :

- des positions P_i et P_j au sein des éléments géométriques dont on étudie l'échange net (§ 5.1.2)
- d'une bande étroite (§ 5.2.1)
- des coefficients d'absorption de chaque gaz au sein d'une bande étroite (§ 5.2.2).

Néanmoins, à ce stade, le lecteur n'est pas en mesure de reproduire notre algorithmique sans quelques précisions supplémentaires concernant, d'une part, l'ordre dans lequel les générations aléatoires sont menées, et d'autre part, la façon avec laquelle notre méthode en “suivi de rayon” peut coïncider avec la présentation formelle de l'algorithme de Monte Carlo du § 4.3.2. Nous reprenons donc ici point par point la logique algorithmique à laquelle nous aboutissons.

Nous avons quatre cas de figure selon que l'on cherche à estimer $\varphi_{S_i \rightarrow S_j}$, $\varphi_{S_i \rightarrow V_j}$, $\varphi_{V_i \rightarrow S_j}$ ou $\varphi_{V_i \rightarrow V_j}$. Dans chaque cas, l'algorithme commence par la génération aléatoire d'une bande étroite.

Tirage d'une bande étroite Si la maille C_i est une maille de volume, on en détermine une dimension caractéristique d et on prend $L = d$. Si la maille C_j est une maille de surface, on détermine une dimension caractéristique du système total D tel qu'il est perçu depuis C_i et on retient $L = D$. Ayant ainsi fixé la longueur L , on calcule pour chaque bande la probabilité donnée par l'**Eq.** 5.5 et on génère aléatoirement une bande étroite n selon le jeu de probabilités ainsi obtenues.

Tirage des coefficients d'absorption La longueur L retenue précédemment est utilisée ici également pour le tirage des coefficients d'absorption de chacun des gaz. On utilise pour cela la densité de probabilité adaptée $f^a(\kappa; L)$ de l'**Eq.** 5.8 avec comme paramètre de pondération $\alpha = \alpha_1(L, 0)$ pour le premier gaz (**Eq.** 5.11), $\alpha = \alpha_2(L, 0)$ pour le second gaz (**Eq.** 5.12), et $\alpha = \alpha_3(L, 0)$ pour le troisième gaz (**Eq.** 5.13). On calcule alors pour chaque

gaz le rapport $a = \frac{\kappa}{\bar{\kappa}}$ et la densité de probabilité de a qui apparaît dans l'**Eq.** 4.25 est donnée par :

$$p(a) = \bar{\kappa} f^a(\kappa; L)$$

Remarque : Lors de ces deux générations aléatoires, dans le cas du calcul de $\varphi_{V_i \rightarrow S_j}$ ou $\varphi_{V_i \rightarrow V_j}$, les propriétés spectrales utilisées sont celles de la maille V_i . Dans le cas du calcul de $\varphi_{S_i \rightarrow S_j}$ ou $\varphi_{S_i \rightarrow V_j}$, on utilise les propriétés spectrales du gaz au contact de la surface S_i . Cependant, si le gaz au contact de la surface n'est pas représentatif du milieu avec lequel S_i va échanger, il est alors préférable d'utiliser une estimation quelconque des propriétés spectrales moyennes du système.

Tirage d'une position sur l'enveloppe de la maille C_i L'étape algorithmique suivante est le tirage d'une position \mathbf{x}_1 sur l'enveloppe de la maille. Ce tirage s'effectue suivant une densité de probabilité uniforme.

- Dans le cas d'une maille de surface, l'enveloppe coïncide avec la surface elle-même et la position obtenue est directement la position initiale de l'**Eq.** 4.25 ($P_i = \mathbf{x}_1$), avec

$$p(\mathbf{r}_{P_i}) = \frac{1}{S_i}$$

- Dans le cas d'une maille de volume, \mathbf{x}_1 ne suffit pas à définir le point origine du rayon P_i et donc, après le tirage angulaire, il sera nécessaire de générer une abscisse curviligne sur le rayon entrant dans V_i depuis \mathbf{x}_1 .

Tirage d'une direction sortante Le point \mathbf{x}_1 sur la surface S_i ou sur l'enveloppe de V_i fixe une normale $\mathbf{e}_n(\mathbf{x}_1)$ à partir de laquelle une direction \mathbf{e}_Ω peut être tirée aléatoirement selon la densité de probabilité $p^a(\mathbf{e}_\Omega; \mathbf{e}_n(\mathbf{x}_1), \kappa L)$ de l'**Eq.** 5.1.

Tirage d'une abscisse curviligne (maille de volume) Dans le cas d'une maille de volume, la position \mathbf{x}_1 et la direction $-\mathbf{e}_\Omega$ fixent une demi-droite entrant dans V_i jusqu'au premier point de sortie \mathbf{x}_2 . Une abscisse curviligne σ_i est alors générée aléatoirement selon la densité de probabilité exponentielle $p(\sigma_i)$ de l'**Eq.** 5.2. La position initiale P_i de l'**Eq.** 4.25

est alors déterminée³ par $\mathbf{r}_{P_i} = \mathbf{x}_1 - \sigma_i \mathbf{e}_\Omega$. La fonction densité de probabilité correspondante est alors donnée par :

$$p(\mathbf{r}_{P_i}) = \frac{1}{S_i} p(\sigma_i)$$

où S_i est ici l'enveloppe du volume V_i .

Trajet du rayon : Suivi de rayon et tirage de la seconde extrémité du chemin optique La position initiale P_i et la direction \mathbf{e}_Ω définissent une demi-droite sortant de C_i . Celle-ci est suivie jusqu'à la paroi de façon à définir l'ensemble des segments d'intersection avec toutes les mailles de volume.

- L'intersection avec la paroi définit, sans tirage supplémentaire, une position P_j dans la maille de surface S_j correspondante. L'**Eq. 4.25** peut alors être utilisée directement pour le calcul Monte Carlo avec comme fonction densité de probabilité pour \mathbf{r}_{P_j} :

$$p(\mathbf{r}_{P_j}) = p^a(\mathbf{e}_\Omega; \mathbf{e}_n(\mathbf{x}_1), \kappa L) \frac{|\mathbf{e}_\Omega \cdot \mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})|}{l_{ij}^2}$$

où $\mathbf{e}_n(\mathbf{r}_{P_j})$ est le vecteur sortant normal à S_j en \mathbf{r}_{P_j} et où l_{ij} est la distance entre P_i et P_j .

- Pour chaque segment d'intersection avec un volume V_j , repéré par les extrémités y_{2l-1} et y_{2l} , une abscisse curviligne σ_{jl} est tirée aléatoirement selon la densité de probabilité exponentielle de l'**Eq. 5.3**. Une position P_{jl} est alors définie par $\mathbf{r}_{P_{jl}} = y_{2l-1} + \sigma_{jl} \mathbf{e}_\Omega$ et l'**Eq. 4.25** peut être utilisée pour le calcul Monte Carlo avec comme fonction densité de probabilité pour $\mathbf{r}_{P_{jl}}$:

$$p(\mathbf{r}_{P_{jl}}) = p^a(\mathbf{e}_\Omega; \mathbf{e}_n(\mathbf{x}_1), \kappa L) p(\sigma_{jl}) \frac{1}{l_{ij}^2}$$

Remarque : Le rayon défini avec origine en P_i est utilisé pour calculer les puissances nettes échangées entre C_i et l'ensemble des éléments géométriques rencontrés. On en appelle donc à l'**Eq. 4.25** à chaque intersection. Par rapport à la présentation générale de Monte Carlo que nous avons proposée, deux points sont alors à noter :

- Les estimateurs statistiques ainsi produits sont corrélés.

³On peut noter que le cas de la surface n'est qu'un cas limite de celui d'une maille de volume en faisant tendre l'épaisseur optique vers l'infini. En effet dans ce cas on trouve $\sigma_i = 0$ et donc $\mathbf{r}_{P_i} = \mathbf{x}_1$

- Lorsque le rayon intersecte plusieurs fois (m fois) une maille de volume V_j , à chaque fois une fonction w_l est estimée. L'estimateur Monte Carlo sera alors $w = \sum_{l=1}^m w_l$ et c'est la moyenne des carrés de w (et non pas la somme des carrés des w_l) qui est à utiliser pour le calcul d'incertitude.

5.4 Illustration des qualités de convergence

A cette étape de notre travail, vient le moment d'apporter la preuve de la qualité du modèle radiatif que nous venons de décrire. Il s'agit à la fois de valider nos résultats face à des configurations de référence mais également de tester la performance des qualités de convergence.

Puisque nous venons de présenter les lois de probabilités optimisées, c'est tout d'abord sur la qualité des écart-types que nous allons nous pencher par l'intermédiaire de configurations académiques⁴.

Notre objectif est donc dans ce § de montrer que sur une large gamme d'épaisseurs optiques l'algorithme ne diverge pas. En effet, nous avons vu que les difficultés de convergence liées aux épaisseurs optiques étaient au coeur des enjeux concernant l'optimisation des variables aléatoires aussi bien géométriques que spectrales. Nous allons donc procéder à une étude paramétrique et tracer pour une large gamme d'épaisseurs optiques le comportement de l'écart-type lié à l'évaluation du terme source radiatif volumique. Ainsi, nous aurons la possibilité de commenter les performances de l'algorithme pour des conditions extrêmes : optiquement minces et optiquement épaisses. Pour tester le comportement numérique de notre méthode en fonction des caractéristiques spectrales du milieu, nous nous plaçons dans la configuration suivante : nous reprenons la géométrie unidimensionnelle du § 5.1.1. où une couche de gaz est confinée entre deux parois noires parallèles. Le milieu est constitué d'un seul gaz aux propriétés radiatives uniformes définies sur une bande étroite par les paramètres $\bar{\kappa}$ et ϕ . Ainsi, une étude paramétrique en $\bar{\kappa}$ et ϕ permet-elle de balayer un grand nombre d'épaisseurs optiques moyennes et de structures spectrales. Sur une bande étroite, le profil de température n'est pas indispensable, on se donne seulement la luminance moyenne dans

⁴La validation du code sur des configurations réelles est reportée au début du Chap.6

la bande en fonction de la hauteur z . C'est un profil parabolique qui est représenté à la **Fig. 5.9**.

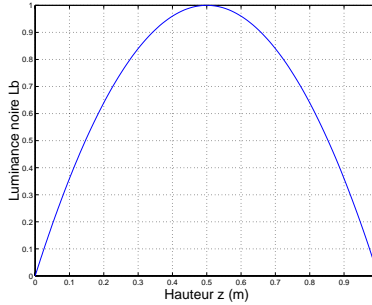


FIG. 5.9 – Profil parabolique de luminance $L_b(z) = 4z(1 - z)$

Les résultats que nous présentons se scindent en deux parties. Tout d'abord, pour une valeur de ϕ fixée ($\phi = 10^{-2}$) nous présentons différents profils de puissances radiatives volumiques de façon à commenter le comportement d'un milieu gazeux de la limite optiquement mince à la limite optiquement épaisse. Dans une seconde partie nous discutons plus spécifiquement le comportement statistique de l'algorithme. Les calculs de termes sources que nous présentons correspondent dans les deux cas à des puissances radiatives volumiques intégrées sur une bande étroite et divisées par la largeur de la bande $\Delta\eta$.

Dans la figure **Fig. 5.10** nous présentons (pour une valeur de ϕ constante) quatre profils de termes sources respectivement pour quatre valeurs de $\bar{\kappa}$: 10^{-5} m^{-1} , 10^{-1} m^{-1} , 10^{+2} m^{-1} et 10^{+5} m^{-1} . Pour estimer ces termes sources, la lame de gaz d'un mètre d'épaisseur est divisée en 20 mailles de volumes et nous procédons à 10000 tirages de rayons lumineux par maille. Nous comparons ces résultats à deux calculs théoriques. Le premier faisant l'hypothèse d'un rayonnement optiquement mince et le second calculé sous l'hypothèse de Rosseland (rayonnement épais). Pour le cas mince, la solution analytique du terme source volumique moyen s'exprime ainsi sur une maille i d'épaisseur Δz_i :

$$\begin{aligned} S_r(V_i) &= \frac{\Delta\eta \int_z^{z+\Delta z_i} dz \, 4\pi\bar{\kappa}L_b(z)}{\Delta z_i} \\ &= \Delta\eta 16\pi\bar{\kappa} \left(-z^2 - z(\Delta z_i - 1) + \frac{\Delta z_i}{2} - \frac{\Delta z_i^2}{3} \right) \end{aligned} \quad (5.14)$$

A la limite mince, le profil analytique de termes sources correspond donc à une parabole de concavité vers le haut que l'on peut observer **Fig. 5.10a**. Le terme source volumique sous

l'hypothèse de Rosseland pour une maille i correspond à l'échange que cette maille peut avoir avec ses deux voisins :

$$\begin{aligned}
 S_r(V_i) &= \frac{\varphi_{V_i \leftrightarrow V_{i-1}} + \varphi_{V_i \leftrightarrow V_{i+1}}}{\Delta z_i} \\
 &= \frac{\Delta \eta \left[- \int_0^\infty d\kappa f(\kappa) \frac{4}{3} \pi \frac{1}{\kappa} \left(\frac{\partial L_b}{\partial z} \right)_z + \int_0^\infty d\kappa f(\kappa) \frac{4}{3} \pi \frac{1}{\kappa} \left(\frac{\partial L_b}{\partial z} \right)_{z+\Delta z} \right]}{\Delta z_i} \\
 &= \frac{\Delta \eta \frac{4}{3} \pi \Delta z_i \left(\frac{\partial^2 L_b}{\partial z^2} \right)_z \int_0^\infty d\kappa f(\kappa; \bar{\kappa}, \phi) \frac{1}{\kappa}}{\Delta z_i} \\
 &= \Delta \eta \frac{4}{3} \pi (-8) \frac{1}{\bar{\kappa}} \left(1 + \frac{1}{\phi} \right)
 \end{aligned} \tag{5.15}$$

On voit donc ici que, pour des mailles de volume non-contiguës à une paroi, le profil de termes sources est une constante indépendante de la hauteur z . Cela n'est vrai que parce nous avons retenu un profil de luminance noire parabolique. A la limite optiquement épaisse en effet, le bilan d'une maille se résume à la somme des échanges nets avec les deux mailles adjacentes, et chacun de ces échanges est proportionnel au gradient de luminance à l'interface entre deux volumes. On retrouve ainsi un modèle de type diffusif⁵ et dans notre cas où le profil de luminance noire est à dérivée seconde constante, ce calcul conduit à un bilan radiatif identique pour toutes les mailles sauf celles au contact des parois. Le résultat de ce modèle est reporté sur les **Fig. 5.10c** et **Fig. 5.10d**.

On constate que pour la **Fig. 5.10a** où $\bar{\kappa} = 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ l'hypothèse mince est pleinement satisfaite. De la même manière pour $\bar{\kappa} = 10^{+5} \text{ m}^{-1}$ l'application du modèle de Rosseland se justifie tout à fait. En revanche, pour des valeurs intermédiaires de $\bar{\kappa}$ aucune des deux limites ne convient. Lorsqu'on pose une valeur de $\bar{\kappa}$ qui semble faible ($\bar{\kappa} = 10^{-1} \text{ m}^{-1}$) il peut être dangereux de faire appel à des modèles minces. En effet, $\bar{\kappa}$ ne peut s'interpréter à partir d'une image d'atténuation exponentielle que dans le cas d'un milieu gris. Dans le cas $\phi = 10^{-2}$ (où l'on se trouve pour cet exemple) le spectre est très marqué et le rayonnement émis par le gaz au centre des raies peut être fortement atténué. De même, lorsqu'on augmente $\bar{\kappa}$ on ne se rapproche pas rapidement de la limite épaisse. Pour $\bar{\kappa} = 100 \text{ m}^{-1}$ on voit en effet sur la **Fig. 5.10c** que le modèle de Rosseland conduit à des résultats très irréalistes. Il s'agit là encore de phénomènes spectraux, le rayonnement aux fréquences des ailes de raie étant très peu atténué malgré une épaisseur optique moyenne élevée. Il existe alors une large gamme

⁵dans le modèle de Rosseland, la puissance nette échangée entre deux couches adjacente devient, comme en diffusion de chaleur (conduction), proportionnelle au gradient de luminance noire

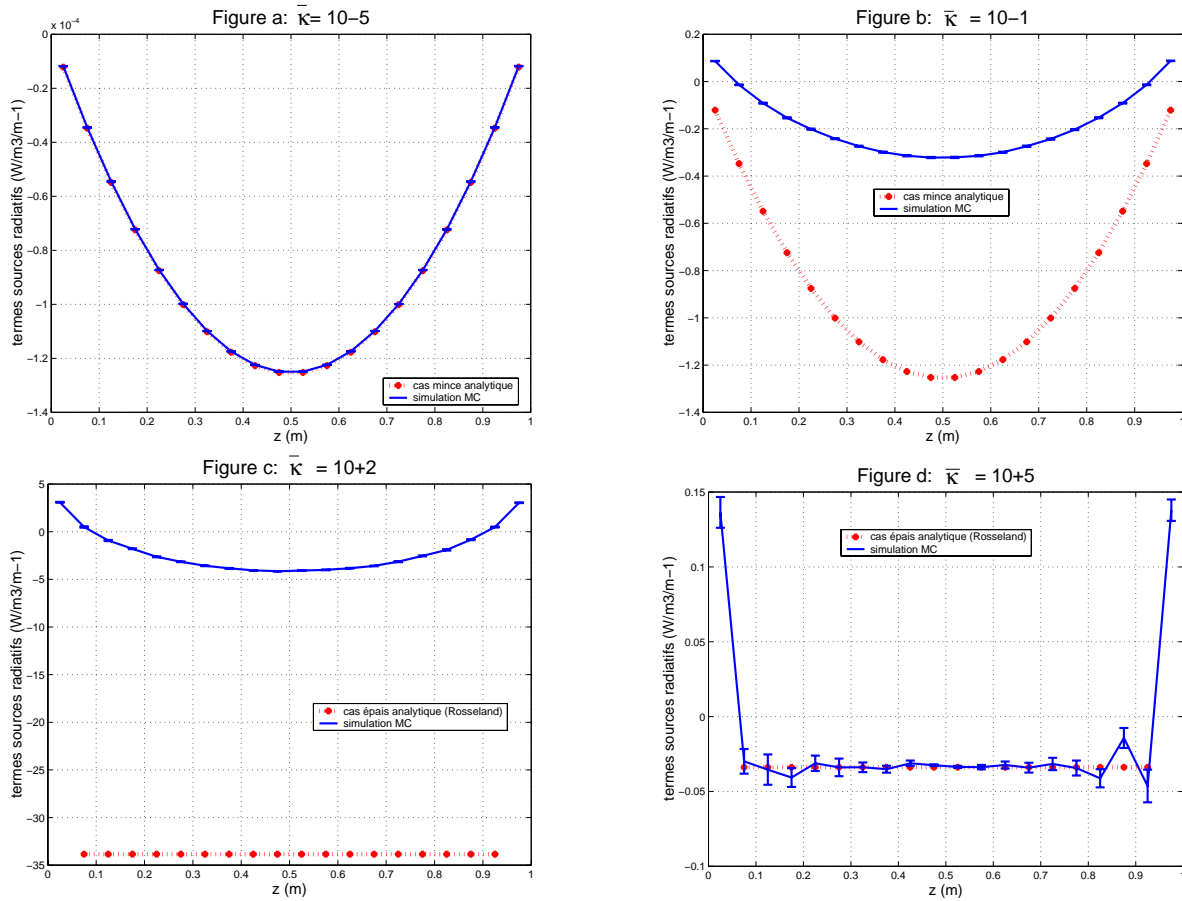


FIG. 5.10 – Profils de termes sources radiatifs volumiques par unité de $\Delta\eta$ pour $\phi = 10^{-2}$ et différents $\bar{\kappa}$: $10^{-5}m^{-1}$, $10^{-1}m^{-1}$, $10^{+2}m^{-1}$ et $10^{+5}m^{-1}$

de valeurs pour lesquelles on a un comportement non mince mais pas encore épais.

Une fois construites ces images physiques du problème étudié, nous nous concentrons sur les performances numériques en balayant une large gamme de valeurs de $\bar{\kappa}$ (entre 10^{-4} et $10^4 m^{-1}$) pour différentes valeurs de ϕ , donc différents types de spectres : 0,01, 0,1 et $+\infty$ (cas gris).

Nous allons présenter l'évolution du terme source et de son écart-type pour deux mailles de volume aux comportements différents. D'abord pour la maille qui se situe au centre sur la ligne médiane entre les deux parois noires puis, pour une maille de volume proche de la paroi⁶. Pour la maille centrale, la **Fig. 5.11** représente les termes sources et l'erreur relative

⁶Nous choisissons une maille, le plus proche possible de la paroi, pour laquelle le signe du terme source

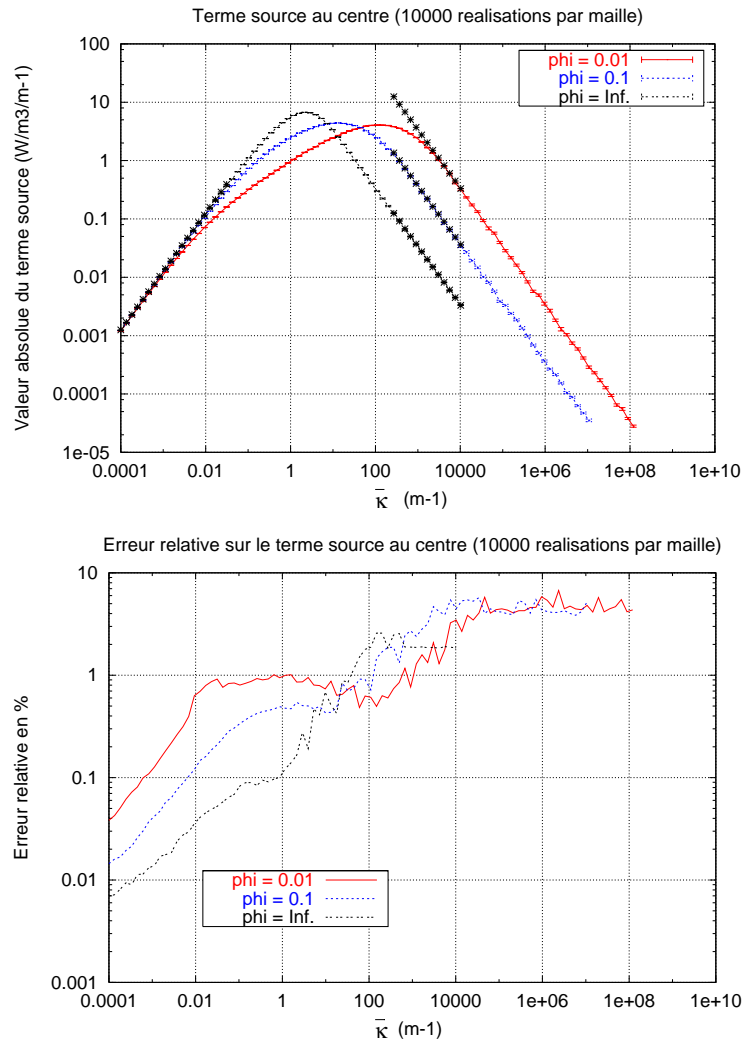


FIG. 5.11 – Courbes de termes sources radiatifs par unité de $\Delta\eta$ et leurs erreurs relatives pour la maille centrale

statistique associée⁷. Pour un $\bar{\kappa}$ faible, les 3 évolutions du terme source sont confondues mais dès que l'épaisseur optique augmente elles se distinguent selon la valeur de ϕ . En effet, dans les deux équations des termes sources aux limites mince et épaisse (**Eq. 5.14** et **Eq. 5.15**), le paramètre de forme ϕ n'intervient que dans la seconde. Dans le cas mince, le modèle du bilan volumique est proportionnel à $\bar{\kappa}$ donc sur l'échelle logarithmique de la figure la pente

reste toujours négatif : nous prenons la 3^{ieme} maille en partant de la paroi

⁷Il s'agit de l'écart-type divisé par la valeur du terme source

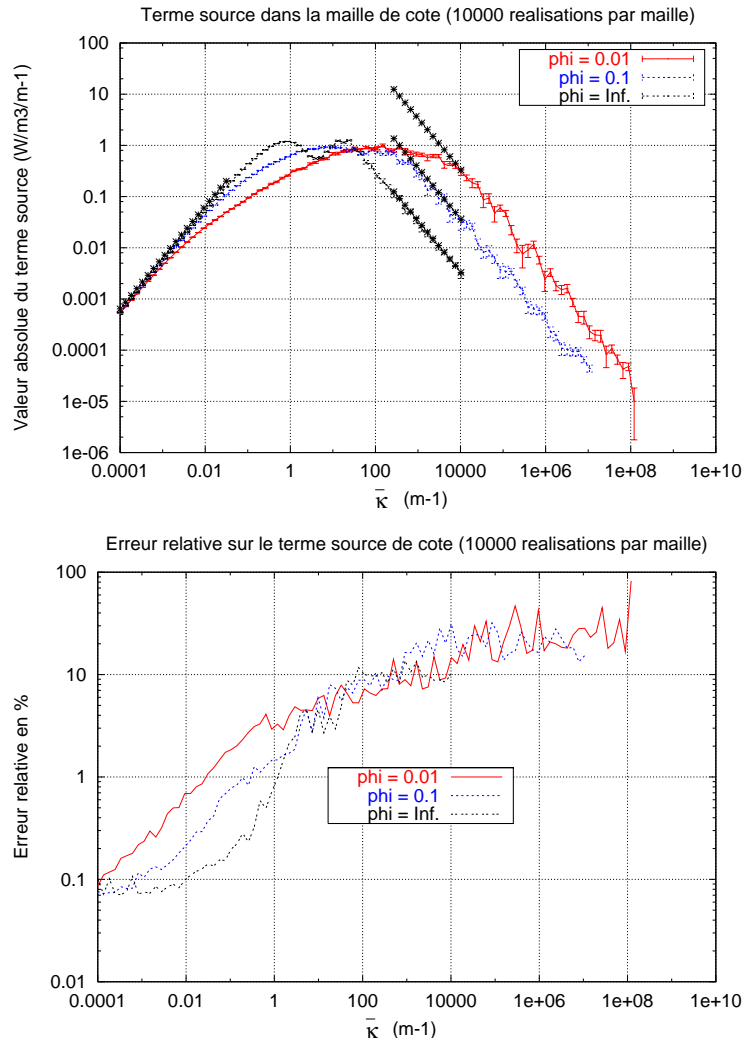


FIG. 5.12 – Courbes de termes sources radiatifs par unité de $\Delta\eta$ et leurs erreurs relatives pour la maille proche de la paroi (3^{eme} maille en partant de la paroi)

est de un⁸. A l'opposé pour le cas épais, le modèle est proportionnel à $\frac{1}{\bar{\kappa}}$ et la pente est égale à moins un⁹. Les solutions aux limites correspondantes sont reportées en trait plein à la Fig. 5.11. En ce qui concerne les erreurs relatives, le résultat essentiel est qu'elles ne divergent pas en fonction de l'épaisseur optique même dans la limite infiniment épaisse. Il est

⁸Cela vient de l'équation $\log(S_r(V_i)) = \log(\bar{\kappa}) + \log(\Delta\eta 16\pi f(z))$ qui est une droite avec une ordonnée à l'origine unique

⁹L'équation $\log(S_r(V_i)) = -\log(\bar{\kappa}) + \log(\Delta\eta \frac{4}{3}\pi(-8)(1 + \frac{1}{\phi}))$ désigne une famille de droite qui se distingue par leur ordonnée à l'origine.

d'ailleurs intéressant de noter que pour de grandes épaisseurs optiques moyennes les erreurs relatives sont constantes, insensibles à l'augmentation de l'épaisseur optique. La valeur limite obtenue est de 2% dans le cas gris et de 5% pour les spectres à raies (**Fig. 5.11**). Ce comportement asymptotique peut s'expliquer en invoquant qu'à forte épaisseur optique les échanges radiatifs ont une faible portée spatiale et, conformément au modèle de Rosseland, l'essentiel est de représenter l'intégration spatiale le long d'un profil quasi-linéaire de luminance noire à proximité de l'interface. Toute la capacité de l'algorithme est donc contenue dans la procédure d'intégration sous maille, ou plus précisément dans son aptitude à reconstruire les gradients de luminance à partir de la double intégration sur les points P_i et P_j . Donc pour réduire encore cette erreur relative, il suffirait de rentrer explicitement ce profil linéaire dans les lois de tirages des positions P_i et P_j . Ceci semble réalisable mais nous n'avons pas poursuivi dans cette voie car les cas limites concernés ne font pas partie des configurations que nous nous attendons à rencontrer en combustion.

Ce qui nous semble essentiel à retenir, c'est que pour des épaisseurs optiques moyennes intermédiaires, avec des spectres de raies marqués, bien que les épaisseurs optiques puissent être très élevées au centre des raies, l'algorithme conduit à des très bonnes estimations (dans la plupart des cas moins de 1% pour 10000 réalisations aléatoires/maille). Ce résultat valide bon nombre de nos choix de densités de probabilités et nous permet d'accorder une bonne confiance en l'aptitude de notre algorithme à aborder une grande diversité de configurations radiatives.

Pour la maille de volume se situant à côté de la paroi **Fig. 5.12** nos commentaires sur les profils de termes sources précédents peuvent être repris à ceci près que les incertitudes relatives sont plus élevées. La raison en est assez simple : à la limite épaisse, le bilan est le résultat de la différence des échanges radiatifs nets à gauche et à droite du volume. Etant donné notre profil parabolique de luminance noire, plus on se rapproche de la paroi, plus les gradients de luminance sont forts et plus le bilan apparaît comme la différence de termes de valeurs comparables. Le calcul d'une valeur à partir de la différence entre deux grands nombres est une source d'erreur qui rend le bilan volumique difficile à estimer.

Chapitre 6

Validations et applications du modèle radiatif à des géométries 1-D cylindriques ou planes - Résultats de couplage avec la combustion

Les chapitres précédents nous ont amené au terme de la mise en place du modèle radiatif et de sa procédure de couplage. Notre présentation du problème radiatif a évité volontairement tout choix concernant les dimensions géométriques. A ce stade, pour la mise en oeuvre de configurations réelles en combustion notre choix s'oriente clairement vers des géométries monodimensionnelles.

Un premier § sera donc consacré à la description du maillage monodimensionnel du code radiatif. Ce sera l'occasion également de rappeler brièvement l'ordre dans lequel nous effectuons la génération des variables aléatoires pour voir comment elle s'adapte à la géométrie proposée. Ensuite, nous exposerons une étude de validité du code de rayonnement qui s'appuie sur une comparaison avec des travaux de référence effectués au laboratoire EM2C à l'occasion de la thèse de L. Pierrot [Pierrot... (1999a)]. Elle sera suivie par deux illustrations en combustion. La première concerne une configuration cylindrique, optiquement épaisse dont l'intérêt se résume à celui d'un pur calcul radiatif sur des profils de température et de vapeur d'eau donnés, mettant en évidence les effets de réabsorption du rayonnement sur

le calcul d'un flux à la paroi. La seconde application plus complexe présente une mise en oeuvre complète de notre démarche de couplage radiatif sur une flamme de méthane à jets opposés. C'est alors que nous serons finalement capables de montrer l'influence de la qualité du modèle radiatif sur la formation de polluants tels que les monoxydes d'azote (NO).

6.1 Description de la géométrie du code de rayonnement et des générations de variables aléatoires associées.

Notre étude s'inscrit à long terme dans le développement du transfert radiatif pour des configurations industrielles. Pour permettre une extension rapide vers des flammes axisymétriques, souvent rencontrées en combustion, nous avons développé un code de transfert radiatif pour une géométrie cylindrique monodimensionnelle (cylindre de hauteur infinie). L'extension de notre modèle radiatif à une géométrie 2-D cylindrique est en cours dans le cadre d'une thèse qui se déroule au laboratoire.

Notre domaine de calcul cylindrique 1-D, infiniment allongé, est bordé par deux frontières. Ces dernières sont matérialisées par deux parois cylindriques (mur noir interne et mur noir externe) aux propriétés radiatives noires (**Fig. 6.1**) respectivement de rayon R_i pour la paroi interne et R_e pour la paroi externe (**Fig. 6.2**). Entre ces deux mur-frontières, il y a un ensemble de volumes qui discrétisent le domaine en zones concentriques. Chacune d'elles a pour base une couronne (par exemple la couronne du volume i qui est au contact de la paroi interne sur la **Fig. 6.2**) et renferme un mélange d'espèces chimiques participantes au rayonnement.

Chaque volume est donc délimité par deux cylindres. Sur celui qui se trouve vers l'extérieur (le plus éloigné de l'axe de symétrie), on note M le point par lequel passe un rayon lumineux (Nous avons représenté le point M pour le volume k sur les figures **Fig. 6.1** et **Fig. 6.2**). A chacun de ces rayons est associé un repère cylindrique, on notera θ l'angle entre le rayon et le vecteur \mathbf{e}_n (vecteur normal au cylindre) et ϕ l'angle d'inclinaison du rayon par rapport au vecteur \mathbf{e}_β (vecteur tangent au cylindre)¹. Dans ce contexte, le déroulement de la procédure algorithmique du Monte Carlo est constituée principalement des étapes suivantes :

¹Le couple de vecteur $(\mathbf{e}_n, \mathbf{e}_\beta)$ définit toujours le plan horizontal

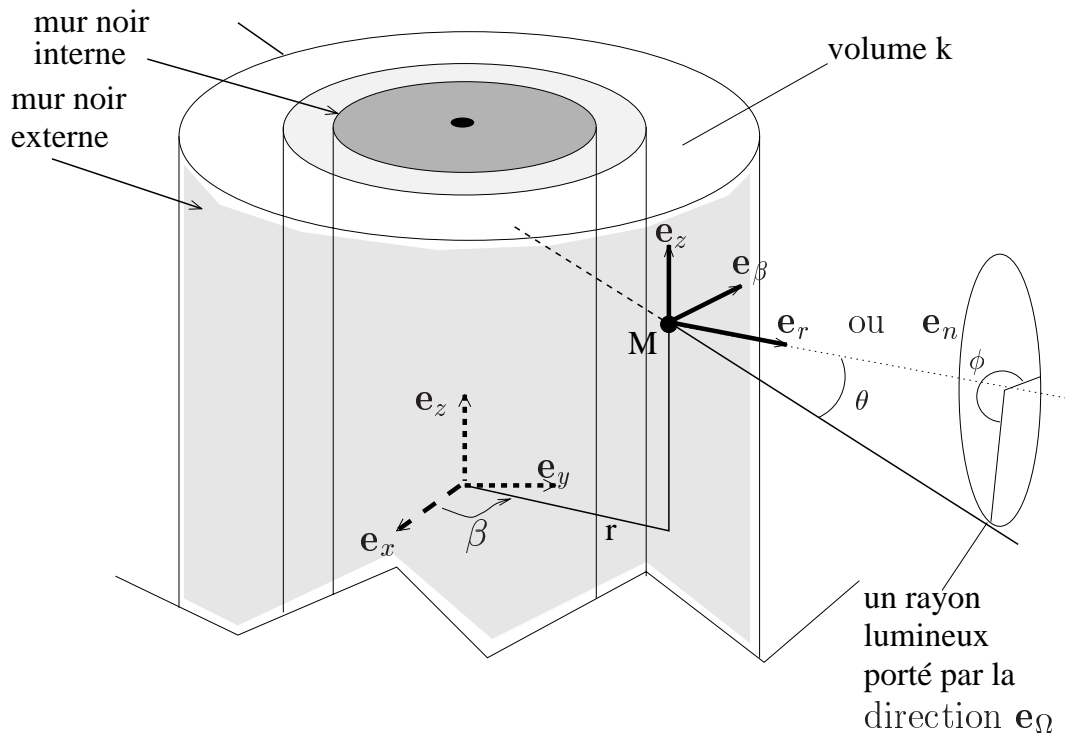


FIG. 6.1 – Géométrie cylindrique infiniment allongée

- choix d'un volume ou d'une des deux surfaces interne ou externe
- génération des variables spectrales : numéro de la bande étroite et coefficient d'émission²
- choix implicite d'un point M sur l'enveloppe connexe au volume courant ou à la surface courante³
- génération des deux angles θ et ϕ pour déterminer une droite passant par le point M
- génération d'une abscisse curviligne⁴ σ_1 dans le volume initial (volume k sur la **Fig. 6.2**) déterminant ainsi un point origine P du rayon⁵ (pour une surface, ce point est implicite)
- suivi du rayon lors de sa traversée dans chaque volume. Pour chacun d'eux on génère

²Dans le cas d'un volume on utilise les conditions thermophysiques locales, pour une surface on prend une valeur moyenne de la température et des concentrations sur la totalité du cylindre

³Par raison de symétrie cylindrique la position de M n'a pas d'importance et ce choix devient donc implicite

⁴sa projection s'appelle σ'_1 dans le plan horizontal (**Fig. 6.2**)

⁵La projection de P sur le plan horizontal s'appelle P' (**Fig. 6.2**)

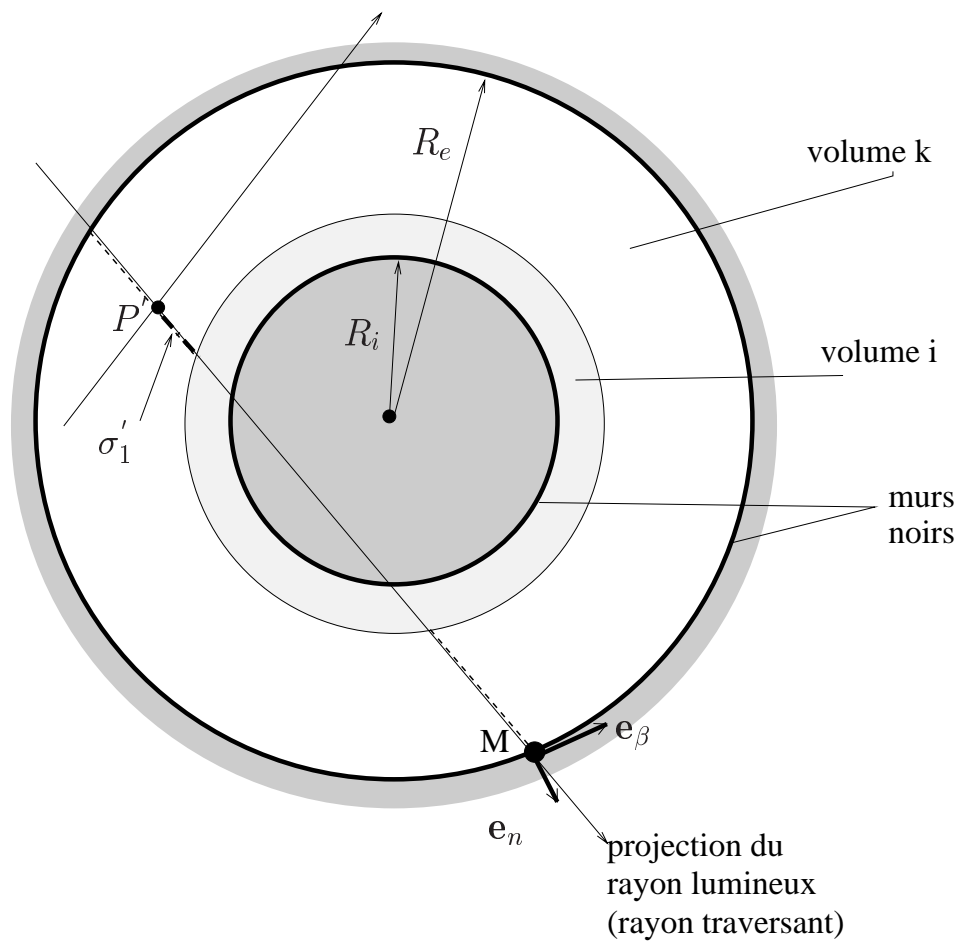


FIG. 6.2 – Géométrie cylindrique vue de dessus

une abscisse curviligne σ_2 qui positionne un point d'arrivée⁶. On procède alors au calcul d'une puissance radiative nette échangée. Cette séquence s'arrête lorsque le rayon atteint une paroi noire. Le processus de génération aléatoire recommence par le choix d'un volume ou d'une surface à partir de laquelle on va tirer un nouveau rayon.

Remarques : Une des difficultés rencontrées pour cette géométrie est qu'un volume peut être intercepté deux fois par un même rayon. Ainsi la détermination des abscisses curvilignes σ_1 et σ_2 ne se fait pas sur un seul segment d'interception mais aussi parfois sur deux. La modularité de notre maillage volumique permet le passage à une géométrie cylindrique pleine

⁶ σ_2 serait générée dans le volume i si l'on poursuit dans la logique de notre exemple **Fig. 6.2**

en prenant pour le cylindre interne R_i un rayon proche de zéro. De même, le passage à la géométrie plane est rendu possible en prenant une valeur élevée pour le rayon du cylindre interne R_i .

Interface avec le maillage du code de combustion : Lorsque dans la dernière partie de ce chapitre nous traiterons du couplage entre rayonnement et combustion nous devons mettre en relation chaque point de la grille utilisée pour discrétiser les équations différentielles du code de combustion avec un volume du code radiatif. La correspondance est très simple : il y a autant de volumes que de points de maillage. C'est la demi-distance entre deux points qui définit les limites d'un volume. Dans les zones de forts gradients et de fortes distorsions de maille cette correspondance pourrait ne pas être justifiée. Mais ce ne sera jamais notre cas car la procédure de remaillage du code de combustion tient compte des gradients pour ajuster l'espace entre les mailles.

6.2 Etude de validité du modèle radiatif formulé en PNE

L'ensemble de notre édifice radiatif a fait l'objet de tests rigoureux à chaque étape du développement de façon à assurer la qualité des résultats. Le besoin de validation est double. Il concerne à la fois le traitement de la géométrie cylindrique mais également la manière dont sont traités les modèles de rayonnement des gaz. Nous présentons ici un ensemble d'éléments, des plus élémentaires au plus complexes, qui nous ont permis de satisfaire à ces deux exigences.

tests analytiques La confrontation des résultats de notre code avec des solutions analytiques a été notre première démarche. Nous avons artificiellement rendu des volumes optiquement épais pour en faire des parois noires et ainsi pour tous les cylindres nous avons retrouvé les facteurs de formes entre cylindres concentriques infiniment allongés, à savoir si leur rayons sont tels que $r_1 \leq r_2$:

$$F_{12} = 1 \quad F_{21} = \frac{r_1}{r_2} \quad F_{22} = 1 - \frac{r_1}{r_2}$$

Pour des rayons lumineux fixés (c'est-à-dire pour un point d'émission et une direction donnés) nous avons comparé les longueurs de rayons parcourues dans le code avec celles théoriques

que nous savions prévoir avec exactitude. Cela nous a permis de valider la majorité des aspects liés à la géométrie cylindrique.

La partie optique du code, pour une géométrie plans parallèles, a d'abord été testée pour un gaz gris et comparée avec succès aux solutions analytiques qui se formulent à l'aide d'intégrales exponentielles (Cf. Chap. 5). Les aspects spectraux, plus pointus, et le traitement des hétérogénéités par Curtis-Godson ont été validés dans un premier temps sur des configurations académiques telles qu'une colonne hétérogène composée de deux colonnes homogènes adjacentes.

tests croisés avec d'autres résultats Pour des configurations réelles, non académiques, nous avons comparé nos résultats avec d'autres codes en géométrie plans parallèles. Les grandeurs que nous avons comparées sont des termes sources volumiques ou bien des flux aux parois. A basses températures et en mélange de gaz homogène nous nous sommes comparés avec les résultats de [Clergent (2000)]. A hautes températures pour des mélanges de gaz hétérogènes nous nous sommes confrontés aux résultats d'un modèle raie par raie du laboratoire EM2C que l'on peut retrouver dans [Pierrot... (1999a), Pierrot... (1999b)]. C'est ce dernier ensemble de validations que nous présentons maintenant.

Etude comparative avec un modèle de propriétés de gaz raie par raie Pour chacun des cas à étudier nous allons comparer de manière intrinsèque les performances de trois modèles de propriétés radiatives construits sur la même base de données spectroscopiques⁷ à un calcul de référence raie-par-raie.

Nous étudions trois configurations. Pour chacune, nous présentons nos résultats de simulation comparés à ceux de [Pierrot... (1999b)]. Les simulations sont menées successivement :

- avec le modèle de traitement des hétérogénéités faisant l'hypothèse de Curtis-Godson noté : SNB 367 CG.
- avec une hypothèse CK (Cf. annexe 4) notée : SNB 367 CK
- avec une hypothèse de séparabilité du spectre : SNB 367 sep

Les résultats du modèle raie-par-raie nous ont été fournis par J. Taine et A. Soufiani du laboratoire EM2C ; ils peuvent être consultés dans [Pierrot... (1999b)].

⁷Les données de bandes étroites que nous avons présentées au Chap.4

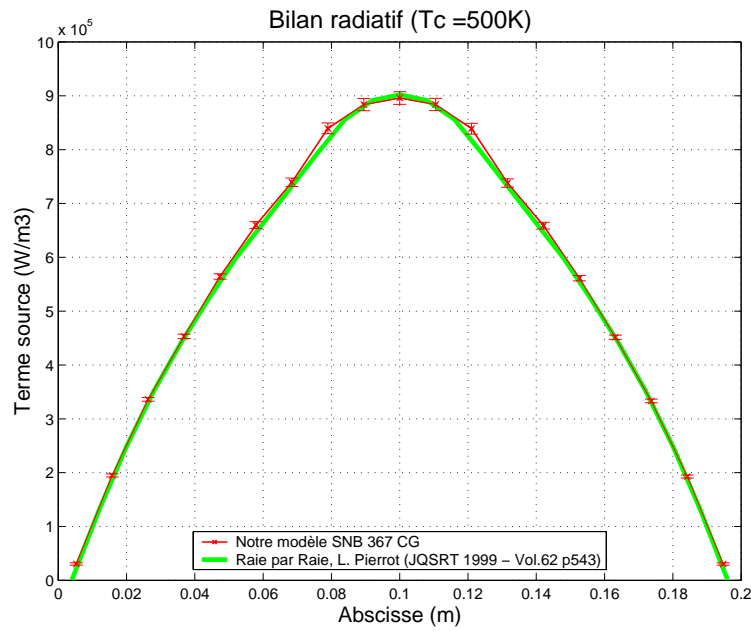


FIG. 6.3 – Puissance radiative volumique dissipée - $X_{H_2O} = 0,1$ - $P = 1 atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$

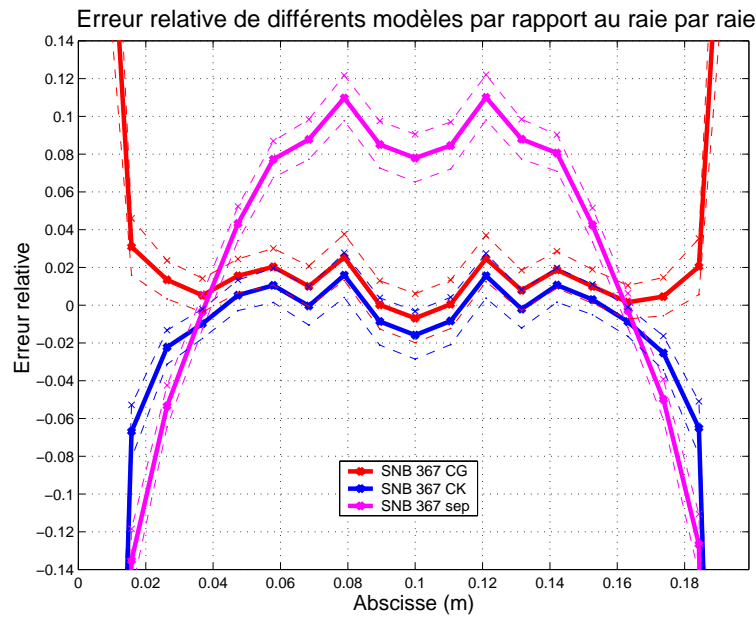


FIG. 6.4 – Différence relative avec le raie-par-raie pour la puissance radiative volumique dissipée - $X_{H_2O} = 0,1$ - $P = 1 atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$

Dans cette partie et par la suite, la pression est fixée à une atmosphère. Le gaz est compris entre deux parois noires parallèles entre lesquelles on utilise deux types possibles de profils paraboliques en température. Le premier est un profil de température parabolique avec les parois plus chaudes ($T_p = 2500K$) que le gaz pour lequel la température au centre T_c sur le plan médian entre les deux parois est égale à $T_c = 500K$. Inversement, pour le second profil $T_p = 500K$ et $T_c = 2500K$.

a/ cas d'un seul gaz participant : Nous calculons les termes sources radiatifs pour un mélange contenant 10 % d' H_2O et 90% de N_2 et le profil parabolique à parois chaudes. La **Fig. 6.3** représente la puissance radiative volumique entre les deux murs noirs en fonction de l'abscisse où l'on se trouve. La distance entre les deux murs est de 20 cm. Il y a 20 mailles de volume et nous effectuons 10000 tirages à partir de chacune d'entre elles. Nous avons reporté à la fois sur cette même figure le modèle raie-par-raie et le modèle SNB 367 CG. Les erreurs relatives des trois modèles (SNB 367 CG, SNB 367 CK, SNB 367 sep) par rapport au calcul raie-par-raie sont représentées sur la **Fig. 6.4** accompagnées de l'écart-type statistique provenant du Monte Carlo que nous avons systématiquement représenté par des traits en pointillé. Les erreurs relatives de plus de 10 % sur les bords ne sont pas très significatives parce que, à proximité de la paroi, le bilan est proche de zéro. On constate que l'hypothèse de séparabilité est très mauvaise et conduit en général à 10 % d'erreur relative au centre. Les autres modèles sont au plus à 4 % d'erreur relative au centre et compte tenu de l'incertitude statistique il apparaît difficile de distinguer leur performance respective à partir de cette simulation.

b/ cas d'un mélange gazeux H_2O / CO_2 : Nous allons maintenant procéder à une étude paramétrique du flux à la paroi en fonction de la distance entre elles deux. Nous ne mentionnons qu'un flux car, en raison du profil symétrique de la température, il est le même sur les deux parois. Comme précédemment la pression est d'une atmosphère et à partir de chacune des 20 mailles de volume nous lançons 10000 rayons. Le mélange gazeux a changé, il est composé désormais de vapeur d'eau et de gaz carbonique ($X_{H_2O} = 0,155$, $X_{CO_2} = 0,116$). Le germe aléatoire est différent pour chacun des flux calculés de manière à assurer une décorrélation statistique sur l'ensemble des résultats. Nous présentons deux séries de résultats correspondant respectivement aux deux profils en température, d'abord

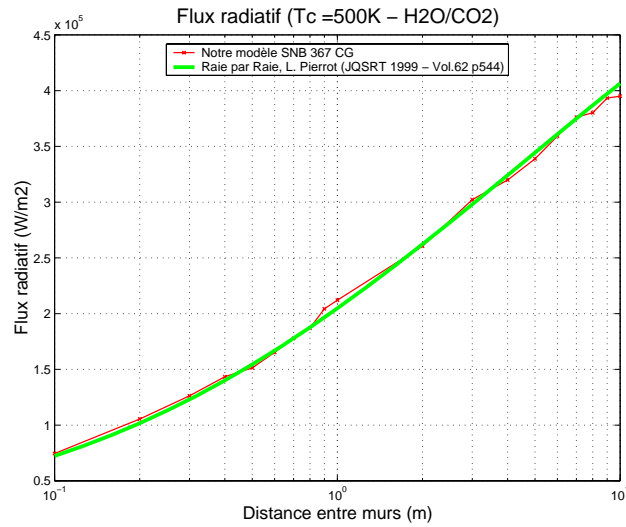


FIG. 6.5 – Flux à la paroi en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$

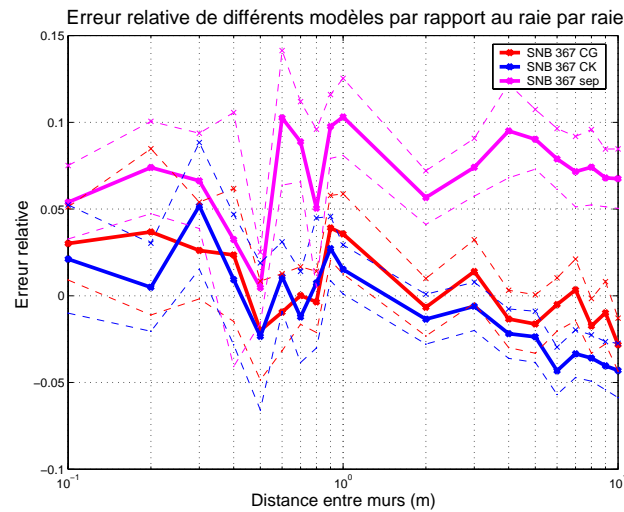


FIG. 6.6 – Différence relative du flux à la paroi par rapport au raie-par-raie en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$

celui avec $T_c = 500 K$ (**Fig. 6.5** et **Fig. 6.6**) puis celui avec $T_c = 2500K$ (**Fig. 6.7** et **Fig. 6.8**).

Le modèle qui fait l'hypothèse de séparabilité, sur les figures **Fig. 6.6** et **Fig. 6.8** reste toujours globalement peu précis. Comme auparavant, les modèles CG et CK restent bien plus

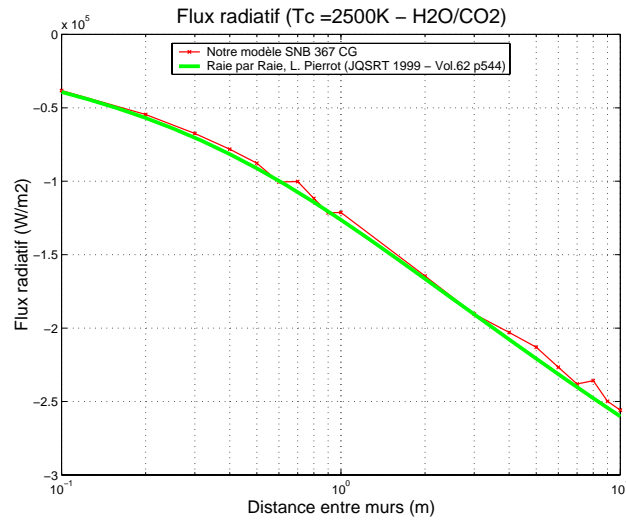


FIG. 6.7 – Flux à la paroi en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 2500 K$

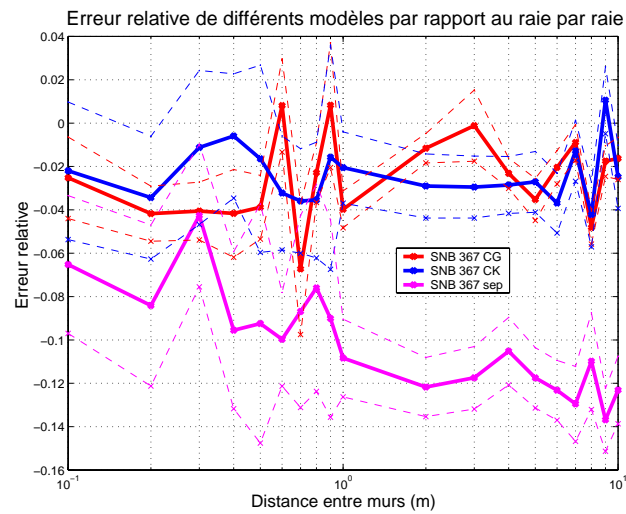


FIG. 6.8 – Différence relative du flux à la paroi par rapport au raie-par-raie en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 2500 K$

performants mais toujours indiscernables quant à leur capacité à traiter les hétérogénéités. Dans le cas de parois chaudes (**Fig. 6.5** et **Fig. 6.6**) ils ont tendance à surestimer le flux pour de petites distances entre parois alors qu'ils le sous-estiment pour de grandes distances.

L'erreur relative ne dépasse pas en général 5 %. Dans le cas de la paroi froide où le phénomène dominant est l'émission du rayonnement par le gaz absorbé par la paroi, l'erreur relative est presque toujours négative. Les résultats obtenus sont globalement en accord avec ceux de [Pierrot... (1999b)] mais on peut noter que pour ces estimations de flux pariétaux, nos incertitudes statistiques sont plus élevées que lors de l'estimation de puissances radiatives volumiques. Nous n'avons pas approfondi cette question mais il s'agit probablement d'un effet de nos lois de tirage qui sont adaptées en vue d'un calcul de puissances volumiques essentiellement.

L'ensemble des résultats radiatifs que nous allons présenter par la suite a été obtenu sur la base du modèle SNB 367 CG dont nous venons de présenter la performance face à un modèle de référence raie-par-raie. Il ne sera plus question par la suite de résultats de simulations ayant utilisé les modèles SNB 367 CK et SNB 367 sep.

6.3 Première application : calcul d'un flux radiatif pariétal pour des profils de température et de vapeur d'eau dans un moteur-fusée

Le principe de déplacement utilisé par le moteur-fusée est celui de l'action et de la réaction. Ainsi, pour produire les gaz chauds en expansion qui vont provoquer le mouvement on utilise des substances (ergols) qui réagissent lors d'une réaction chimique fortement exothermique. Les ergols cryotechniques (Ex : oxygène, hydrogène) sont ceux que l'on conserve sous forme liquide à des températures très basses de l'ordre de -200°C . Dans les chambres à combustion de moteur-fusée l'hydrogène liquide est préchauffé avant d'être introduit. L'étape pendant laquelle on chauffe le liquide avant de l'injecter dans la chambre de combustion est réalisée par l'intermédiaire d'un échangeur de chaleur placé à la base de la tuyère d'éjection. La prédiction de la température de paroi est donc fondamentale pour rechercher le point de fonctionnement du dispositif. Ainsi, une attention particulière est portée au calcul des flux radiatifs à la paroi. C'est dans le cadre d'une estimation de leur valeur que nous présentons un calcul radiatif sur des profils de température et de vapeur d'eau donnés. Cette étude ne reste cependant qu'un point de départ pour une étude plus réaliste qui devrait tenir compte

de la réelle géométrie finie du système et de son émissivité de paroi.

Ces résultats viennent illustrer également les capacités de notre code Monte-Carlo à traiter les spécificités de la géométrie cylindrique précédemment décrite et à bien converger pour des nombres de réalisations aléatoires pas trop élevés, du fait des optimisations des densités de probabilités, en présence d'un gaz absorbant (vapeur d'eau) à fortes concentrations.

Le diamètre du système est de 0,9932 mètres. La pression est partout égale à une atmosphère. Par raison de symétrie on ne fait le calcul que sur un demi-cylindre dans lequel on distingue deux zones où le comportement des profils en température et concentration est très différent (**Fig. 6.9**). Dans la zone centrale "A" la température est constante à une valeur de 2980 K et la fraction molaire d'eau est égale à 0,7. Ce n'est que sur un très petit domaine, quelques millimètres proche de la paroi, que se développe une couche limite pour laquelle les profils de température et de vapeur d'eau ont été reportés sur la **Fig. 6.10**. Cette zone sera maillée beaucoup plus finement que le reste du système et nous l'appellerons zone "B". Les profils de couche limite que nous utilisons sont issus d'un travail du groupe combustion du CERFACS⁸. Nous avons cherché sur cette flamme à déterminer les termes sources radiatifs et le flux radiatif pariétal. Nous présentons les résultats de calcul pour un maillage

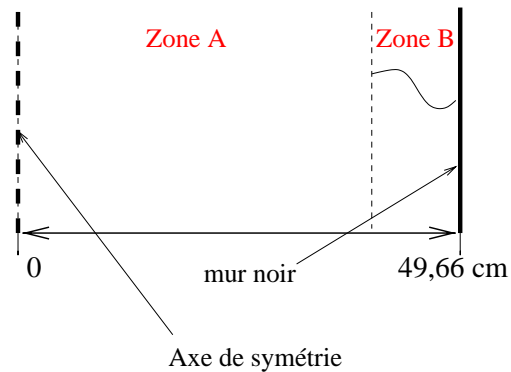


FIG. 6.9 – Localisation des profils sur un schéma en coupe verticale d'un demi-cylindre de hauteur infinie

constitué de 130 volumes et pour 10000 tirages de rayons lumineux à partir de chacun d'eux. Les résultats de termes sources radiatifs sur la totalité du domaine de calcul et sur la zone B sont reproduits sur la première ligne de la **Fig. 6.11**. Sur la seconde ligne on observe les

⁸European Center for Research and Advanced Training in Scientific Computation (Toulouse - France)

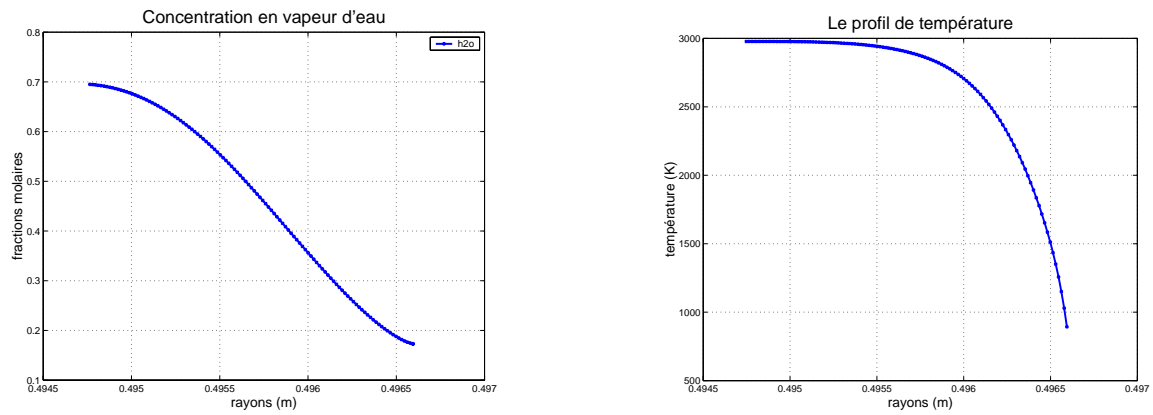


FIG. 6.10 – Profils de vapeur d'eau et de température dans la couche limite pour le moteur-fusée

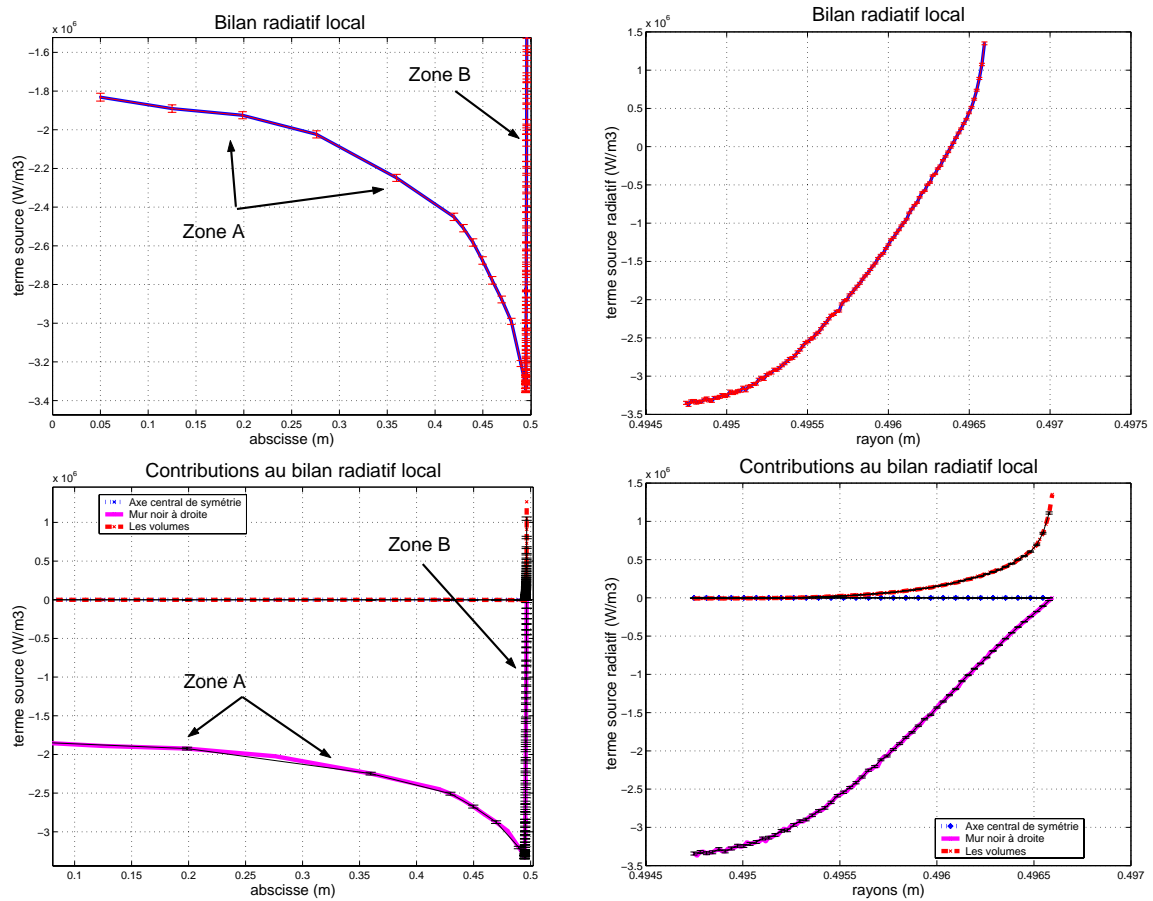


FIG. 6.11 – Termes sources radiatifs sur un demi-cylindre - Zoom sur la couche limite pariétale

contributions distinctes des volumes et de la paroi aux calculs des termes sources que l'on commentera plus loin. On note au passage que le profil de termes sources ne commence pas à l'abscisse zéro parce son point extrême du côté de l'axe de symétrie est centré sur le grand volume que nous avons placé dans la zone A.

Le terme source radiatif en haut à gauche de la **Fig. 6.11** présente deux maxima. L'un proche de l'axe de symétrie qui correspond à une perte radiative de près de $-1,81 \cdot 10^6 \text{ W.m}^{-3}$ et l'autre dans la couche limite qui est un gain atteignant $1,4 \cdot 10^6 \text{ W.m}^{-3}$. Lorsque la fraction molaire et la température diminuent dans la zone B, le terme source croît et devient positif. En fait, le coeur formé par la zone A rayonne et vient réchauffer la couche pariétale qui reçoit alors plus d'énergie qu'elle en émet au fur et à mesure que l'on se rapproche de la paroi.

On peut ensuite vouloir commenter les contributions séparées des volumes et de la paroi dans le calcul du terme source volumique. La paroi interne n'a pas de contribution parce que c'est un axe de symétrie (cylindre interne de rayon proche de zéro). Pour expliquer le comportement différent des gaz et des parois on peut tout d'abord rechercher le potentiel énergétique d'échange à travers les différences de température du volume avec la paroi. En particulier on observe que les échanges avec la paroi sont nuls proche de celle-ci et s'élèvent à mesure qu'on s'en éloigne c'est-à-dire lorsque la différence de température gaz/paroi augmente. De même, les échanges gaz/gaz étant ici essentiellement des échanges avec la masse de gaz chauds au coeur de la flamme, ils sont nuls sur l'extérieur de la couche là où la température locale rejoint celle du centre. Ils s'élèvent à proximité de la paroi là où la température du gaz diminue favorisant donc un échange plus important avec le coeur.

Ces résultats sont à compléter par l'élément essentiel que nous souhaitions évaluer, c'est-à-dire le flux à la paroi. Il est égal à $0,576 \pm 0,004 \text{ MW.m}^{-2}$. L'incertitude relative⁹ sur le résultat est proche de 1,4%. Nous avons effectué le même calcul en supprimant les réabsorptions du rayonnement dans le code pour nous donner une idée de l'erreur que l'on pourrait commettre avec un modèle optiquement mince. Le résultat du flux pariétale a été alors de $1,237 \pm 0,008 \text{ MW.m}^{-2}$. Ainsi, l'erreur commise avoisine les 100% si l'on ne tient pas compte des effets de réabsorption du rayonnement comme c'est souvent le cas dans les modèles radiatifs simples qui sont utilisés en combustion.

Nous venons de présenter les résultats d'un calcul Monte Carlo dans des conditions très

⁹Il s'agit de deux fois l'écart-type divisé par la valeur

difficiles d'un point de vue géométrique puisque nous avons des tailles de maille allant de quelques centimètres à quelques dixièmes de millimètres et d'un point de vue optique puisqu'on peut atteindre jusqu'à 70 % de vapeur d'eau en fraction molaire. Ce même calcul a été repris avec 100 tirages par maille pour un résultat de flux en paroi alors estimé à $0,54 \pm 0,03 \text{ MW.m}^{-2}$ soit donc avec une erreur relative de 11 %. On voit que la perte de précision de 10 % n'est pas énorme face au gain de temps obtenu en abaissant le nombre de tirages¹⁰. Un tel gain est directement lié à l'optimisation des lois de probabilités que nous avons présentées au Chap.5. Nous allons passer maintenant à un autre aspect de notre travail qui concerne la mise en oeuvre du couplage entre la combustion et le rayonnement.

6.4 La flamme de diffusion à jets opposés

Notre dernier objectif est de mettre en oeuvre la méthodologie de couplage sur laquelle nous avons travaillé pour un mélange gaz/suie et de montrer les effets que peut apporter un modèle de rayonnement détaillé dans la prédiction des espèces mineures pour une flamme à jets opposés de méthane à pression atmosphérique ($P=1 \text{ atm}$ en tout point). Nous revenons d'abord sur les caractéristiques du modèle de combustion pour y apporter quelques compléments puis nous procéderons en trois étapes : élaboration de la solution de référence radiative par Monte Carlo, mise en oeuvre de la procédure de couplage, puis effets du couplage dans le domaine des faibles taux d'étirement de la flamme.

6.4.1 Rappels sur le modèle de combustion

Etant donnée la forte interaction entre le terme source radiatif et la formation des particules de suies, leur prise en compte dans les bilans radiatifs est nécessaire lorsque l'on se fixe comme objectif de prédire la température de manière fine. Le modèle de suies que nous utilisons fait un certain nombre d'hypothèses évoquées au Chap.2. Rappelons que le schéma cinétique utilisé est à deux réactions : nucléation et croissance. Ce modèle de cinétique de suie reste largement grossier face aux développements radiatifs que nous avons menés. Ce-

¹⁰Sur une machine Sun Ultra-30 300MHz cela correspond à 7 heures de calcul pour 10000 tirages par maille et à 9 min pour 100 tirages par maille

pendant dans la gamme de taux d'étirement qui est la nôtre pour une flamme de méthane avec, à la base, le même modèle de suie, un auteur [Beltrame... (2001)] indique que pour faire correspondre ce modèle à des valeurs expérimentales de fractions volumiques de suie il a été obligé d'ajuster le taux croissance. Lindstedt [Lindstedt (1994)] mentionne également cette nécessité dans son propre modèle. Nous avons tenu compte de ces deux remarques dans la mise en oeuvre du modèle de suie en procédant à l'ajustement du taux de croissance. Par exemple, cela fixe raisonnablement la fraction volumique de suie à $0,03 \cdot 10^{-6}$ pour un taux d'étirement de 20 s^{-1} . Dans le modèle de flamme que nous utilisons, nous rappelons également que le modèle radiatif mince avec lequel nous avons présenté les premiers résultats (**Fig. 2.9** page 43 : OTL Hubbard) est construit sur des données spectroscopiques qui ne sont pas celles dont nous avons fait usage par la suite. Pour effectuer une comparaison stricte entre les différents modèles radiatifs, nous avons donc fabriqué un modèle mince¹¹ en accord avec nos données spectroscopiques que nous désignerons par OTL.

Nous commençons par reprendre la configuration de flamme à jets opposés utilisée à titre d'illustration au Chap.2 (**Fig. 2.9** page 43). Nous rappelons qu'il s'agit d'une flamme plane à jets opposés air/méthane pur (richesse proche de 10) qui correspond à un taux d'étirement de $28,5 \text{ s}^{-1}$. Les exemples de flammes sensibles au rayonnement exposés dans la bibliographie du Chap.3 sont très souvent avec de fortes richesses. Nous conservons donc cette flamme, bien qu'elle soit encore à un taux d'étirement élevé par rapport aux exemples de la bibliographie, parce qu'elle va nous servir de flamme de départ pour une étude paramétrique concernant l'influence du rayonnement lorsqu'on procède à l'abaissement du taux d'étirement. On reprend donc la même flamme qu'au Chap.2 avec les mêmes conditions aux limites mais en y introduisant les deux compléments précédents : le modèle de suie et le nouveau modèle OTL.

Une série de nouveaux résultats est présentée **Fig. 6.12**. La température maximale coïncide toujours avec le pic de pertes radiatives. Il existe des différences avec la **Fig. 2.9** du Chap.2 au niveau des concentrations des produits. Nous avons rajouté la fraction molaire de *NO* et la fraction volumique de suie. Le pic de fraction volumique de suie est décalé par rapport à ceux de la vapeur d'eau ou de monoxyde d'azote. En effet, la suie est produite

¹¹Le terme d'émission se présente comme une somme sur l'ensemble des bandes étroites indicées par n :

$$\Sigma_b 4\pi \bar{\kappa}_n L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)_n(Tgaz) - \pi L_{b,\eta}(\mathbf{r}_P)_n(Tparoi)$$

en général de manière localisée du côté de la flamme par lequel arrive le méthane. On peut remarquer que la présence de la suie provoque une déformation du terme source radiatif sur le zoom qui en a été fait (**Fig. 6.12** : 2^{ème} ligne à gauche). Ceci reste cependant sans incidence sur la structure de flamme (le taux d'étirement de $28,5 \text{ s}^{-1}$ reste inchangé) car elle se comporte globalement de manière optiquement mince.

Nous pouvons nous assurer de cette dernière remarque en observant les points à forts taux d'étirement sur la figure en bas à droite de la **Fig. 6.12** présentant l'évolution de la température maximale de flamme en fonction du taux d'étirement pour différents modèles radiatifs. On observe une différence naissante entre les deux modèles minces (OTL Hubbard et OTL) due à l'utilisation de propriétés radiatives différentes. Le second modèle a été construit sur la base des données spectroscopiques en bandes étroites qui nous ont également servi à l'élaboration du modèle complet formulé en Puissances Nettes Echangées. On s'aperçoit également que la présence des suies provoque, dans la région des faibles taux d'étirement (10^{-1} , 10^{-2}), un abaissement en température de 20 K par rapport à la température qui serait calculée pour des gaz sans suies (comparaison entre OTL et OTL+suies). La différence avec et sans modèle radiatif mince pour les gaz est plus importante ; elle est supérieure à 80 K (comparaison entre “sans rad” et OTL). De manière générale, la contribution des suies au rayonnement total apparaîtra par la suite toujours plus petite que celle des gaz pour cette flamme de méthane.

Nous allons maintenant aborder les différentes étapes qui vont nous permettre de coupler à cette flamme un calcul complet et précis des transferts radiatifs. Le principe est le suivant : nous allons expliciter la mise en oeuvre du couplage à partir de la flamme dont nous disposons pour un taux d'étirement de $28,5 \text{ s}^{-1}$. Bien évidemment ce ne sont pas des conditions favorables à la mise en évidence d'effets radiatifs importants puisque la flamme a ici un comportement global optiquement mince. Mais cette flamme sera un point de départ à une étude paramétrique pour laquelle nous abaisserons le taux d'étirement.

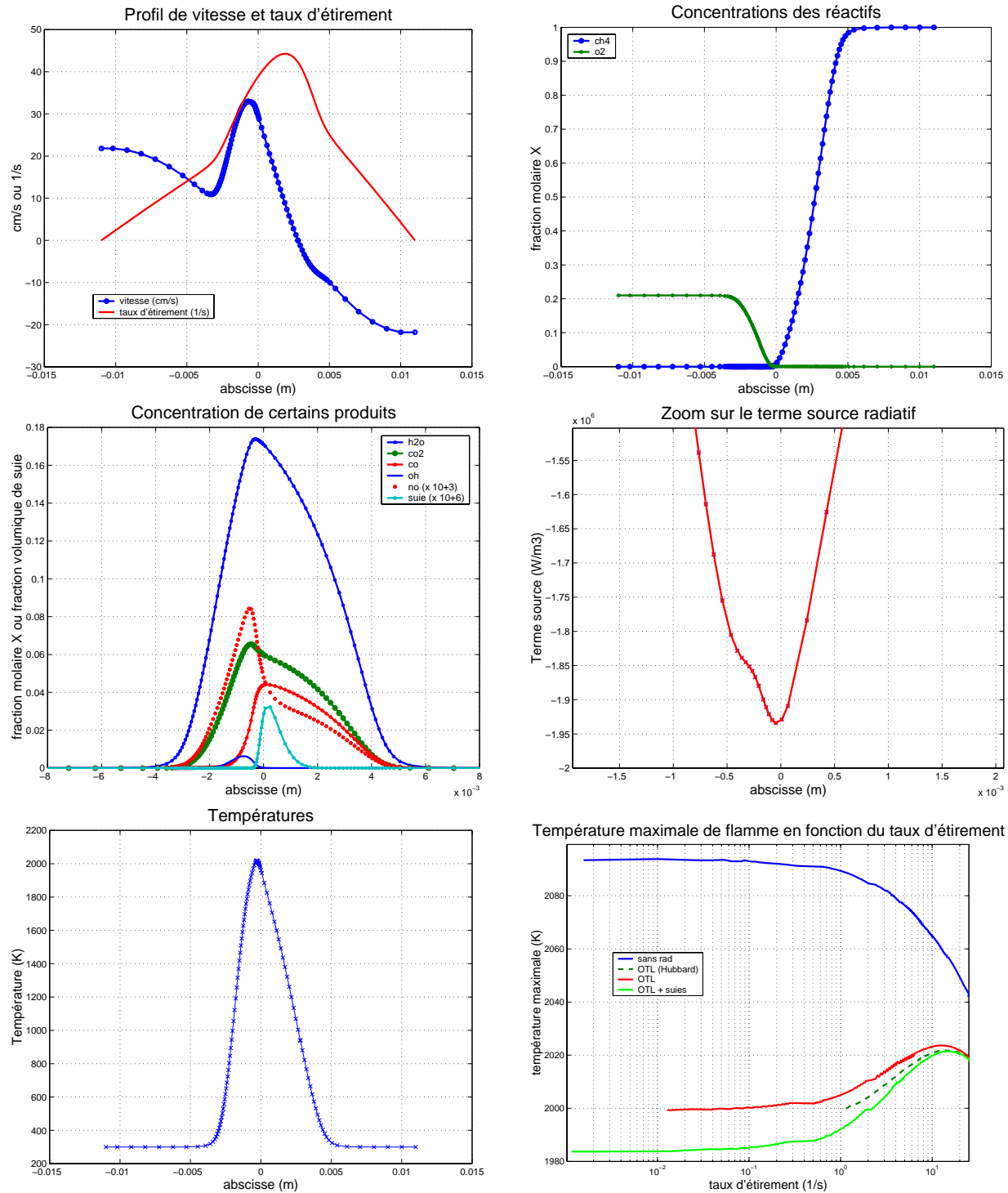


FIG. 6.12 – Les profils d'une flamme à jets opposés air/méthane pur et l'évolution de sa température maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant

6.4.2 Construction d'une solution de référence sur les profils en concentrations et température de la flamme à $28,5 s^{-1}$

Pour coupler le TLM avec la combustion, il faut disposer d'une solution radiative de référence. Ce calcul complet est produit par la méthode de Monte-Carlo sur les profils de concentrations et température de la flamme que nous venons de présenter dans le § précédent.

Les **Fig. 6.13** et **Fig. 6.14** présentent les résultats radiatifs obtenus. Pour la **Fig. 6.13** à gauche nous avons le terme source radiatif et à droite sa décomposition en différentes contributions à savoir les échanges d'un volume avec l'ensemble des autres volumes de gaz, avec la paroi gauche ou avec la paroi droite. Il est possible de poursuivre cette décomposition en décomposant à son tour l'échange d'un volume avec tous les autres en leurs contributions distinctes (volume/volume) : c'est ce que représente la matrice des PNE de la **Fig. 6.14**.

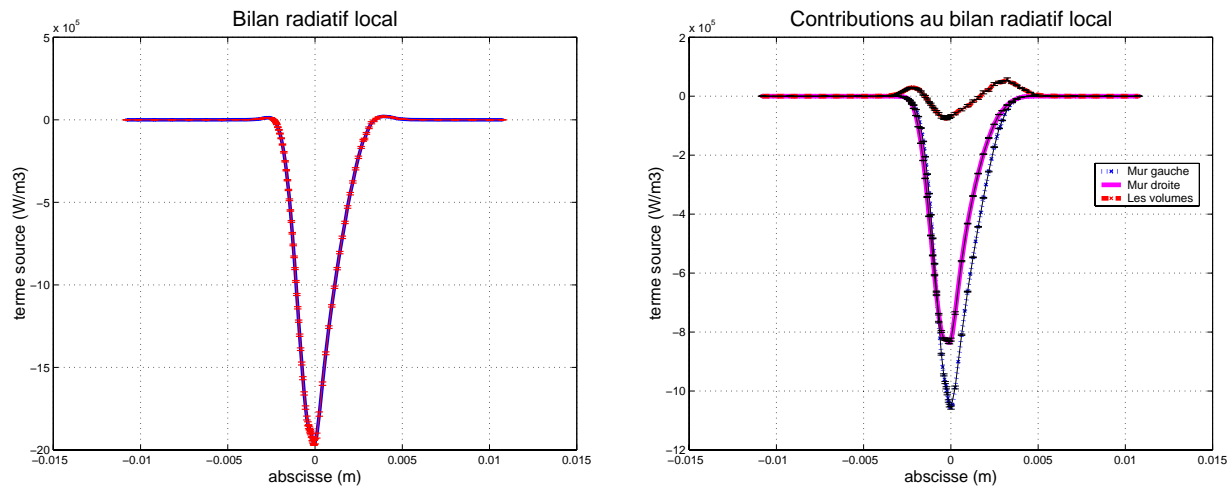


FIG. 6.13 – Contributions séparées aux termes sources radiatifs pour la flamme à $28,5 s^{-1}$ - Monte Carlo complet

On observe, sur la **Fig. 6.13** à gauche, qu'en tout point le rayonnement se traduit par une perte énergétique, sauf en bord de flamme où les gaz froids peuvent être réchauffés par les gaz chauds du centre de flamme. Si l'on met de côté cette zone extrêmement petite, le terme source radiatif est donc un terme de refroidissement dont on voit qu'il résulte principalement de l'échange avec les parois qui se trouvent aux frontières du domaine (**Fig. 6.13** à droite). Il s'agit donc d'une configuration favorable à l'utilisation d'un modèle de rayonnement optiquement mince. Néanmoins, en regardant de plus près les échanges avec le volume,

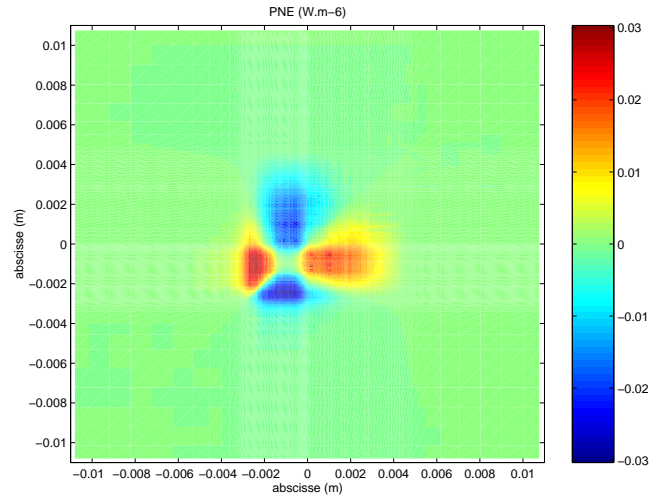


FIG. 6.14 – Echanges radiatifs volume/volume

donc les effets de redistribution énergétique au sein de la flamme, on voit qu'ils ne sont pas si négligeables. On le voit sur la contribution des échanges avec les parois gauche et droite qui sont disymétriques. La flamme étant décentrée légèrement sur la gauche, la paroi droite perçoit les points de la flamme à travers une couche de gaz absorbant plus importante, ce qui explique sa plus faible contribution au bilan. Malgré ces effets qui semblent importants le modèle mince de la **Fig. 6.12** (sur lequel on a fait un zoom) n'est pas trop éloigné du calcul de référence. C'est parce qu'intervient un phénomène de compensation spécifique des profils de flammes.

Prenons par exemple un point au niveau du pic de température (c'est-à-dire au pic du terme source volumique **Fig. 6.13**). Les effet d'atténuation par absorption gazeuse font que les puissances nettes qu'il échange avec les parois sont plus faibles dans notre modèle que sous l'hypothèse optiquement mince. Cependant ces absorptions sont autant de lieux d'échange avec le volume de gaz et on peut même affirmer que si le gaz intermédiaire était à la même température que la paroi, ceci compenserait cela et le modèle mince serait exact. En pratique dans notre flamme, les gradients de température sont très forts et donc, excepté immédiatement à proximité d'un point, les échanges gaz-gaz se font avec un milieu relativement froid. L'effet de compensation est donc manifeste.

Le modèle optiquement mince conduit donc à de très bons résultats dans la majeure

partie de la flamme pour des taux d'étirement pas trop faibles. On peut garder en mémoire que s'il peut exister un bon comportement, face à un modèle optiquement mince, ce n'est pas uniquement lié à la faiblesse des échanges gaz-gaz, mais également à un effet de compensation qui est fortement dépendant des conditions aux limites en luminance (ici les deux parois noires sont à température froide par rapport à la flamme). Ce point peut s'avérer important lorsque l'on pense à l'utilisation qui est faite des résultats de flammes monodimensionnelles dans les modèles de turbulence de type flammelettes.

La contribution des gaz seuls peut être elle-même décomposée par l'utilisation directe des puissances nettes échangées volume/volume que nous avons reproduites **Fig. 6.14**. Cette matrice d'échange est antisymétrique (Chap.3). Pour la lire, on peut donc ne prendre que la moitié de la figure à partir de la diagonale. On peut également, pour chaque élément de volume, se placer sur l'horizontale correspondant à son abscisse et lire successivement, par une échelle de couleurs, les puissances nettes qu'il échange avec chacun des autres éléments de volume. Par exemple, si l'on se place au niveau du front de flamme qui correspond au point le plus chaud du système, on peut voir que les échanges nets avec les éléments de gaz sur la droite et sur la gauche ont tous valeur de refroidissement radiatif. Dans un premier temps, ils augmentent avec la distance du fait de l'augmentation de l'écart de température entre les deux mailles du couple considéré. Dans un second temps, bien qu'en s'éloignant du front de flamme, la température continue à s'abaisser, et donc que le potentiel énergétique d'échange continue à augmenter, les PNE diminuent du fait de la combinaison : d'une part de l'effet d'atténuation associé à l'éloignement, et d'autre part plus simplement, de la diminution des concentrations des espèces rayonnantes (H_2O , CO_2 et CO).

Cette représentation détaillée des redistributions énergétiques au sein de la flamme peut apparaître comme un simple exercice de style pour une configuration aussi académique, mais il a été montré dans d'autres contextes (étude de couplage rayonnement-convection naturelle [Fournier (1994), Clergent (2000)]) qu'elle pouvait être d'un soutien précieux dans les phases d'exploration des mécanismes de couplage.

Après cette discussion sur le comportement radiatif de la flamme à jets opposés, la mise en oeuvre pratique du couplage sur la base de nos calculs radiatifs détaillés va être traitée dans le § suivant. Cela va nous rapprocher du moment où nous pourrons montrer que pour des taux d'étirement plus faibles, l'effet de compensation spécifique ne suffit pas à rattraper

l'erreur commise par l'utilisation d'un modèle optiquement mince.

6.4.3 Mise en oeuvre de la procédure de couplage et contrôle de la qualité des résultats couplés

Notre approche de couplage des codes de rayonnement et de combustion va donc être illustrée. La procédure de couplage entre le code de rayonnement et le code radiatif est schématisée **Fig. 6.15**. On rappelle qu'on doit effectuer un premier calcul de combustion sur les résultats duquel (profils de température et de concentrations) nous effectuons un calcul radiatif de référence de type Monte Carlo. C'est ce que nous venons de présenter dans le § précédent. Ensuite, un calcul de combustion couplé (repartant de l'ancienne solution de flamme convergée) est effectué par l'intermédiaire du modèle radiatif réduit (TLM), construit à partir des termes sources radiatifs et des matrices de sensibilités du calcul de référence. C'est ce que symbolisent les deux flèches en trait gras de la **Fig. 6.15**. Une dernière étape de contrôle, comme le souligne la dernière ligne dans la **Fig. 6.15**, consiste à reprendre un calcul par Monte Carlo sur la base des profils de température et concentrations obtenus après couplage, de façon à s'assurer que le modèle TLM n'a pas été utilisé en dehors de sa plage linéaire de validité.

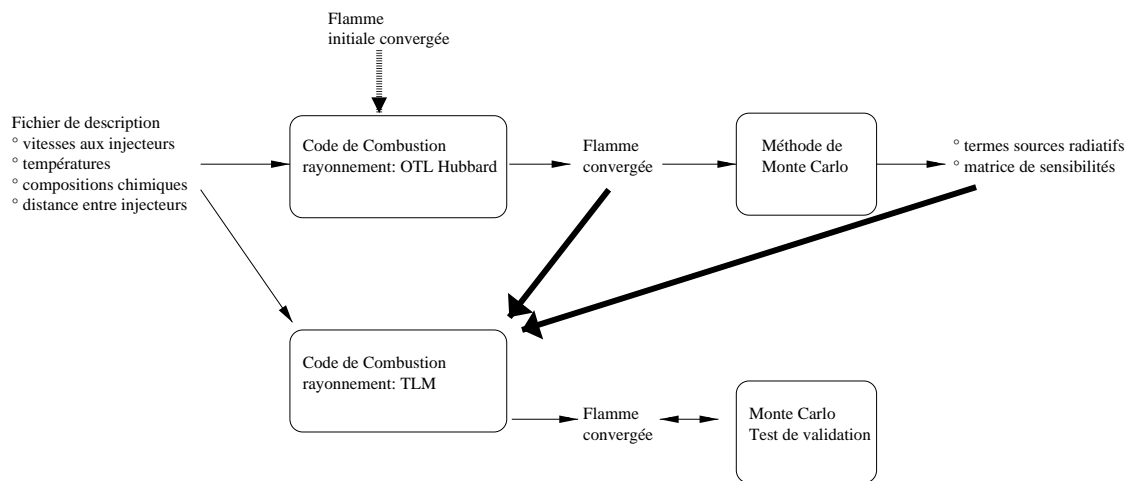


FIG. 6.15 – Procédure de couplage numérique entre le code de combustion et le code radiatif Monte Carlo

Sur la flamme précédente la mise en oeuvre de cette procédure de couplage a permis

d'obtenir de nouveaux profils de flamme pour lesquels se pose le problème attendu de vérification de la qualité du couplage vis-à-vis de la plage de validité linéaire du TLM. Pour cela systématiquement, comme nous l'avons déjà annoncé, on effectue un calcul de contrôle avec le Monte Carlo sur les nouveaux profils de flamme obtenus après couplage. Ainsi, pour notre flamme à $28,5 \text{ s}^{-1}$, le terme source radiatif obtenu par couplage avec le TLM et l'erreur relative par rapport au terme source obtenu avec le Monte Carlo de contrôle ont été représentés **Fig. 6.16**. Dans la zone importante du calcul (terme source radiatif non nul) l'erreur relative n'excède pas 5% et avoisine le plus souvent 1% au centre. Cet écart ne peut pas avoir d'incidence notable sur le calcul couplé de la température.

L'ensemble des calculs radiatifs couplés, réalisés par la suite, sont tous effectués pour une erreur relative d'au maximum 5 % sur les termes sources radiatifs couplés par rapport à un calcul complet Monte-Carlo et ceci dans une large zone autour du pic radiatif¹². Nous n'en ferons plus mention mais un calcul par Monte Carlo est systématiquement effectué pour s'assurer que l'on est dans les limites de tolérance que nous venons de fixer.

6.4.4 Calculs couplés pour des flammes à bas taux d'étirement

Pour explorer les effets du rayonnement sur ce type de flammes, il est plus intéressant de prendre des conditions aux limites conduisant à de faibles taux d'étirement. En effet, à faible taux d'étirement, la flamme s'épaissit avec des effets de réabsorption plus significatifs, mais aussi, les termes de refroidissement convectifs et conductifs diminuent, ce qui rend la flamme d'autant plus sensible au terme source radiatif.

Nous proposons de présenter une étude paramétrique de la température maximale de flamme et de fraction molaire maximale de NO en fonction d'un taux d'étirement décroissant. Depuis notre flamme de départ (étirement de $28,5 \text{ s}^{-1}$), nous avons donc régulièrement abaissé les vitesses des jets de CH_4 et d'air de manière symétrique jusqu'à obtenir des taux d'étirement inférieurs à $0,01 \text{ s}^{-1}$.

Commençons par examiner l'évolution de la température maximale de flamme en fonction

¹²Objectivement, une telle démarche nécessite d'établir un critère rigoureux. Cela a déjà été commenté et il s'agit d'une étude actuellement en cours, au moment où l'on écrit ces lignes, qui concerne l'évaluation des termes de second ordre du modèle TLM. Cela dépasse largement le cadre de notre travail actuel.

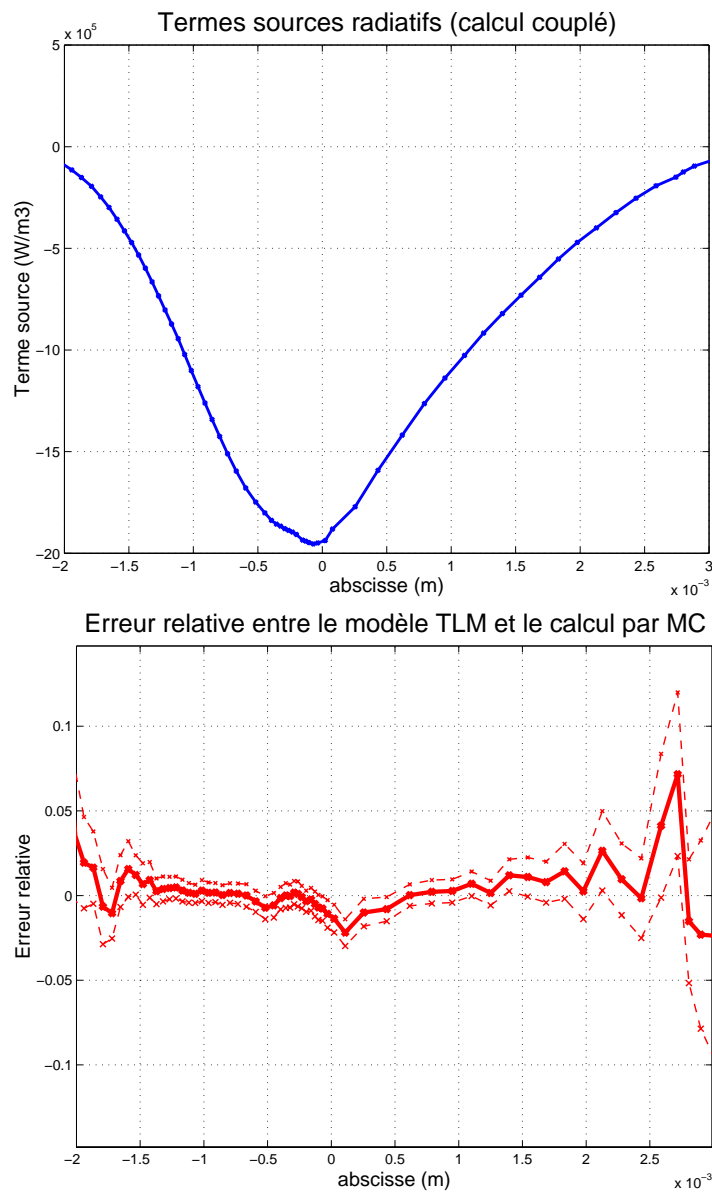


FIG. 6.16 – Terme source couplé en utilisant le TLM - Son erreur relative par rapport à un calcul de contrôle par Monte Carlo

du taux d'étirement. Nous avons reproduit sur la **Fig. 6.17** les courbes déjà présentées sans rayonnement et avec l'OTL auxquelles on a rajouté les résultats couplés avec notre modèle TLM. Nous avons donc sur la **Fig. 6.17** l'évolution de la température maximale en fonction du taux d'étirement décroissant pour trois modèles radiatifs différents. Le premier provient d'un calcul sans terme source radiatif et on constate que l'introduction d'un modèle radiatif conduit à une baisse de température d'une centaine de kelvins. L'utilisation de notre modèle radiatif précis apporte à cet écart une correction positive d'un peu moins de 10 K. Si l'on se rappelle que l'utilisation du modèle de suie conduisait à un écart de 20 K, on voit que l'utilisation d'un modèle radiatif détaillé est aussi importante que l'usage d'un modèle de suie pour cette flamme. On ne peut pas tenir pour exacts, de manière absolue nos résultats étant données les incertitudes associées à notre modèle de cinétique de suies. Ils montrent en revanche la relative importance entre le modèle de suie et le modèle radiatif détaillé. Une étude fine ne peut donc se faire ni sans l'un ni sans l'autre. On retrouve là une justification première du développement de notre méthodologie, ceci indépendamment des effets beaucoup plus importants attendus pour des flammes industrielles de dimension géométrique beaucoup plus importante.

Mais ceci n'est qu'un des points importants que nous voulions souligner. Un autre résultat a été de pouvoir mettre en évidence l'influence de la prise en compte de transferts radiatifs précis dans la prédiction de production d'espèces mineures polluantes comme le NO. On peut voir **Fig. 6.18** que les écarts en fraction molaire de NO auxquels on aboutit, à très faible taux d'étirement, entre un modèle radiatif mince et un modèle complet sont de l'ordre de 5%. Non seulement ces résultats sont en accord avec les rares études de la littérature sur cette configuration de flamme à savoir [Chan... (1995)] et plus récemment [Beltrame... (2001)] mais aussi ils permettent de mieux cerner les enjeux du couplage du rayonnement dans la prédiction d'espèces chimiques mineures. Un écart de 10 K en température peut provoquer une variation du pic de fraction molaire de NO de 5 %. Il est difficile d'extrapoler à ce que pourrait indiquer l'étude de flammes de plus grandes dimensions ou plus riches en suies. Mais on voit que même pour cette flamme peu rayonnante (et qui malgré tout s'imposait comme première étape) les modèles simplifiés de rayonnement conduisent à des erreurs faibles mais non négligeables en terme de prédiction d'espèces polluantes, ce qui justifie là encore la réflexion méthodologique qui a été la nôtre dans cette étude.

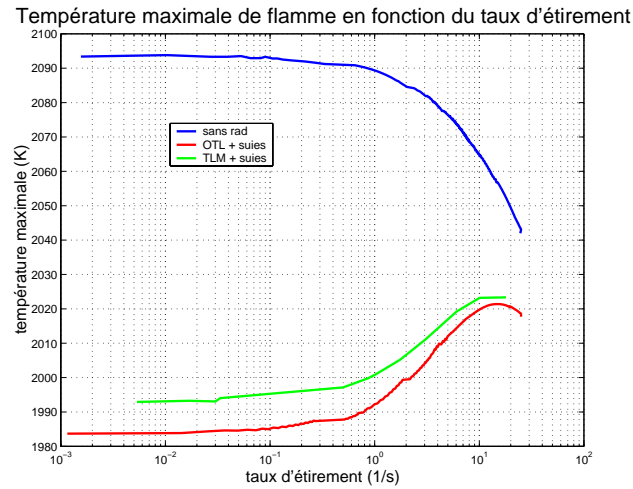


FIG. 6.17 – Evolution de la température maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant

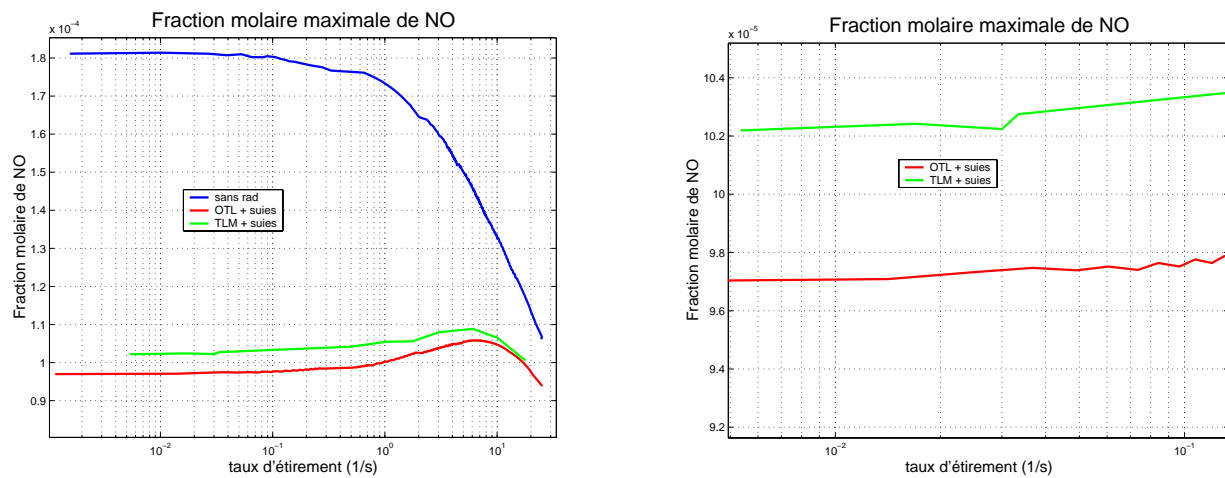


FIG. 6.18 – Evolution de la fraction de NO maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant - Un zoom est proposé à droite

Conclusion

Les modèles de transfert radiatifs spectraux permettant un couplage avec une chimie détaillée en combustion sont assez peu nombreux à ce jour. Dans ce contexte, la première conclusion de notre travail est qu'il a été possible de mettre en oeuvre un modèle de combustion associant une cinétique détaillée et un modèle précis de rayonnement, sur la base d'une méthodologie pensée depuis le point de départ, pour permettre, sans compromis de précision incontrôlée, une extension vers des configurations de complexité croissante. A la base de notre méthodologie se trouve la méthode de Monte Carlo associée des principes d'optimisation que nous avons détaillés. Ceci pour deux raisons :

- Produire un calcul de référence, pour lequel un contrôle de précision systématique est effectué, deviendra essentiel pour l'étude de configurations moins maîtrisées que les systèmes à plans parallèles que nous avons étudiés jusqu'ici. L'optimisation s'impose alors comme une nécessité face au compromis à trouver entre temps de calcul et précision.
- Coupler notre modèle de rayonnement, par l'intermédiaire des sensibilités des termes sources radiatifs aux températures et concentrations, exige de porter une grande attention à la qualité des estimations de sensibilités.

Cette optimisation de la méthode de Monte Carlo repose sur le lien étroit que nous avons voulu maintenir entre l'algorithme et la formulation mathématique sous-jacente. Elle représente une base numérique tout à fait favorable au traitement des géométries réelles, ainsi qu'à la diversification des phénomènes physiques à prendre en compte (réflexions aux parois, diffusion).

Du point de vue de la combustion, en quelque sorte, nous pourrions dire que nous n'avons rien avancé de fortement significatif, si ce n'est de confirmer les principaux résultats de la littérature sur une base méthodologique différente. Nous espérons néanmoins que cette

méthodologie aura l'attrait, dans le domaine de la combustion, d'une approche fiable de couplage cinétique chimique/rayonnement, évitant les compromis souvent délicats sur la représentation des propriétés spectrales des gaz. Cette sécurité peut en particulier s'avérer utile dans les phases d'exploration de mécanismes qui seront probablement essentielles dans le contexte actuel de recherche autour de la physico-chimie des émissions de polluants.

L'essentiel des résultats que l'on peut trouver dans la littérature sur le couplage rayonnement-combustion sont obtenus en utilisant des modèles radiatifs simplifiés. Ces modèles reposent en général sur l'hypothèse de milieu optiquement mince, qui apparaît comme bien adaptée aux calculs des échanges radiatifs dans les flammes monodimensionnelles à jets opposés. L'analyse détaillée des échanges volume/volume confirme que le modèle mince décrit correctement les échanges radiatifs de manière globale sur une large plage de taux d'étirements. Cela s'explique par des effets de compensation liés principalement aux conditions aux limites en température et en luminance. Il n'est pas certain cependant que ces effets de compensation persistent lorsque cette flamme se trouve plongée dans une ambiance à haute température et turbulente (on peut imaginer par exemple cette configuration dans le cadre de la "théorie des flammelettes"). En effet, dans ce cas, le problème est beaucoup moins simple à traiter car les conditions aux limites provoquent des problèmes de corrélations spectrales et l'utilisation du modèle mince peut s'avérer moins réaliste.

D'un point de vue radiatif, ce travail nous a poussé à mener une réflexion approfondie sur la formulation des transferts radiatifs ainsi que sur les optimisations nécessaires à une bonne exploitation des potentiels des méthodes d'intégration statistiques telles que la méthode de Monte Carlo. Nous espérons que les différentes lois de probabilité que nous avons pu proposer, sur la base d'analyses spectrales et optico-géométriques en géométrie simplifiée, auront un pouvoir de généralisation suffisant pour être utiles sur une large classe de configurations de combustion. Dans cet esprit, les perspectives d'extension de ce travail sur un plan radiatif ont été déjà mentionnées à différentes reprises :

- La première concerne le passage à des géométries bi- et tridimensionnelles. Tout dans nos travaux a été développé en ce sens et il a déjà été possible d'étendre notre code radiatif à des géométries cylindriques bidimensionnelles, sans difficulté autre que la complexité croissante de la programmation associée. Le code ainsi obtenu est actuellement en phase de validation. Il a été pensé comme une étape intéressante pour d'éventuels

travaux de couplage rayonnement/combustion sur des flammes de diffusion axisymétriques laminaires en accompagnement de travaux expérimentaux en cours au laboratoire. Mais c'est surtout un moyen de tester les difficultés pratiques du passage en géométrie tridimensionnelle, passage autour duquel un travail a été amorcé en collaboration avec l'équipe de recherche en informatique d'images de synthèse de l'IRIT¹³ [Thèse en cours de P. Pérez]. qui dispose d'une base algorithmique avancée autour de l'ensemble des questions de suivi de rayon en milieu semi-transparent.

- La seconde concerne la prise en compte de phénomènes de réflexion et diffusion. Au sujet des phénomènes de multi-réflexions, nous pouvons nous inspirer de très nombreux travaux qui abordent la question à partir de la méthode de Monte Carlo, que ce soit dans le domaine de la thermique, ou là encore dans le domaine des images de synthèse. Les questions de diffusions sont moins explorées, surtout dès lors que les libres parcours moyens d'absorption et de diffusion sont comparables. A ce jour, notre algorithme a été repris et implanté en géométrie monodimensionnelle pour l'étude de configurations d'atmosphères planétaires diffusantes [DEA Energétique, Jean-Luc Garcia, 2000, UPS, Thèse en cours de V. Eymet]. Les résultats sont satisfaisants aux épaisseurs optiques de diffusion intermédiaires, mais l'extension de nos propositions d'optimisation optico-géométriques et spectrales aux fortes épaisseurs optiques de diffusion demanderont certainement un investissement important.
- D'un point de vue plus technique, nous avons également exploré les potentiels de parallélisation de nos algorithmes qui héritent sans difficulté des avantages intrinsèques de la méthode de Monte Carlo. Une version de développement de notre code radiatif a été parallélisée avec succès, ce qui a permis de confirmer que les gains de parallélisation sont très élevés, même à partir d'une base matérielle modeste (montage PVM sur une dizaine de PC en réseau) du fait des très faibles besoins de communication entre processeurs.

Pour revenir à la combustion, on peut sur ce plan également lister une série d'extensions envisagées :

- La première serait de pousser plus en avant notre représentation de la cinétique de formation des particules de suie de façon à proposer des résultats quantitatifs fiables, par exemple en ce qui concerne l'effet du schéma cinétique et de la prise en compte du

¹³Institut de Recherche en Informatique de Toulouse.

transport des suies sur la production de NO_x .

- Indépendamment des questions d'amélioration du modèle, sur flamme dont nous disposons actuellement, nous envisageons d'explorer des configurations qui pourraient apparaître optiquement plus épaisses. Soit en changeant les conditions aux limites en températures, soit par l'enrichissement en oxygène de la flamme. L'influence de la dilution du méthane semble aussi un réel moyen de rechercher des configurations où la formation de NO_x serait plus sensible au rayonnement.
- Il est prévu également d'exploiter l'information disponible dans la matrice de sensibilité des termes radiatifs pour amorcer une analyse physique détaillée des mécanismes du couplage rayonnement/cinétique, en particulier rayonnement/cinétique de suie.
- A plus long terme, nous comptons travailler au développement d'un modèle de couplage instationnaire. Il deviendra alors essentiel de mettre en oeuvre une procédure automatique de re-calcul des matrices de sensibilités lorsque la flamme s'écarte de la plage de validité du modèle TLM. Pour cela nous comptons nous appuyer sur un calcul Monte Carlo des dérivées au second ordre des termes sources en fonction des températures et concentrations, calcul dont nous espérons qu'il ne sera pas plus coûteux que celui des matrices de sensibilités.
- Enfin, comme annoncé ci-dessus, nous comptons assez rapidement nous orienter vers l'étude de configurations de flammes laminaires axisymétriques bidimensionnelles.

Annexe 1 : Schéma GRImech 2.1

	A_i	β_i	E_i
	facteur	exposant de	Energie d'activation
	pré-exponentiel	la température	dans le sens direct
ELEMENTS			
O			
H			
C			
N			
END			
SPECIES			
CH4 CH3 CH2 CH HCCOH CH2O HCO CO2 CO			
H2 H O2 O OH H2O2 H2O			
C2H6 C2H5 C2H4 C2H3 C2H2 C2H			
HCCO C CH2CO			
CH3O CH2OH CH3OH			
CH2(S)			
N			
NH			
NH2 NH3 NNH NO NO2 N2O HNO CN			
HCN H2CN HCNN HCNO HOCN HNCO NCO			
N2			
END			
REACTIONS			
2O+M<=>O2+M	1.200E+17	-1.000	.00
H2/ 2.40/ H2O/15.40/ CH4/ 2.00/ CO/ 1.75/ CO2/ 3.60/ C2H6/ 3.00/			
O+H+M<=>OH+M	5.000E+17	-1.000	.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
O+H2<=>H+OH	5.000E+04	2.670	6290.00
O+HO2<=>OH+O2	2.000E+13	.000	.00
O+H2O2<=>OH+H2O	9.630E+06	2.000	4000.00
O+CH<=>H+CO	5.700E+13	.000	.00
O+CH2<=>H+HCO	8.000E+13	.000	.00
O+CH2(S)<=>H2+CO	1.500E+13	.000	.00
O+CH2(S)<=>H+HCO	1.500E+13	.000	.00
O+CH3<=>H+CH2O	8.430E+13	.000	.00
O+CH4<=>OH+CH3	1.020E+09	1.500	8600.00
O+CO+M<=>CO2+M	6.020E+14	.000	3000.00
H2/2.00/ O2/6.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/3.50/ C2H6/3.00/			
O+HCO<=>OH+CO	3.000E+13	.000	.00
O+HCO<=>H+CO2	3.000E+13	.000	.00
O+CH2O<=>OH+HCO	3.900E+13	.000	3540.00
O+CH2OH<=>OH+CH2O	1.000E+13	.000	.00
O+CH3O<=>OH+CH2O	1.000E+13	.000	.00
O+CH3OH<=>OH+CH2OH	3.880E+05	2.500	3100.00
O+CH3OH<=>OH+CH3O	1.300E+05	2.500	5000.00
O+C2H<=>CH+CO	5.000E+13	.000	.00
O+C2H2<=>H+HCCO	1.020E+07	2.000	1900.00
O+C2H2<=>OH+C2H	4.600E+19	-1.410	28950.00
O+C2H2<=>CO+CH2	1.020E+07	2.000	1900.00
O+C2H3<=>H+CH2CO	3.000E+13	.000	.00

O+C2H4<=>CH3+HCO	1.920E+07	1.830	220.00
O+C2H5<=>CH3+CH2O	1.320E+14	.000	.00
O+C2H6<=>OH+C2H5	8.980E+07	1.920	5690.00
O+HCCO<=>H+2CO	1.000E+14	.000	.00
O+CH2CO<=>OH+HCCO	1.000E+13	.000	8000.00
O+CH2CO<=>CH2+CO2	1.750E+12	.000	1350.00
O2+CO<=>O+CO2	2.500E+12	.000	47800.00
O2+CH2O<=>HO2+HCO	1.000E+14	.000	40000.00
H+O2+M<=>HO2+M	2.800E+18	-.860	.00
O2/.00/ H2O/.00/ CO/.75/ CO2/1.50/ C2H6/1.50/ N2/.00/	3.000E+20	-1.720	.00
H+2O2<=>HO2+O2	9.380E+18	-.760	.00
H+O2+H2O<=>HO2+H2O	3.750E+20	-1.720	.00
H+O2+N2<=>HO2+N2	8.300E+13	.000	14413.00
H+O2<=>O+OH	1.000E+18	-1.000	.00
2H+M<=>H2+M	9.000E+16	-.600	.00
H2/.00/ H2O/.00/ CH4/2.00/ CO2/.00/ C2H6/3.00/	6.000E+19	-1.250	.00
2H+H2<=>2H2	5.500E+20	-2.000	.00
2H+H2O<=>H2+H2O	2.200E+22	-2.000	.00
2H+CO2<=>H2+CO2	3.970E+12	.000	671.00
H+OH+M<=>H2O+M	2.800E+13	.000	1068.00
H2/.73/ H2O/3.65/ CH4/2.00/ C2H6/3.00/	1.340E+14	.000	635.00
H+HO2<=>O+H2O	1.210E+07	2.000	5200.00
H+HO2<=>O2+H2	1.000E+13	.000	3600.00
H+HO2<=>2OH	1.100E+14	.000	.00
H+H2O2<=>HO2+H2	2.500E+16	-.800	.00
H+H2O2<=>OH+H2O			
H+CH<=>C+H2			
H+CH2(+M)<=>CH3(+M)			
LOW / 3.200E+27 -3.140 1230.00/			
TROE/.6800 78.00 1995.00 5590.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+CH2(S)<=>CH+H2	3.000E+13	.000	.00
H+CH3(+M)<=>CH4(+M)	1.270E+16	-.630	383.00
LOW / 2.477E+33 -4.760 2440.00/			
TROE/.7830 74.00 2941.00 6964.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+CH4<=>CH3+H2	6.600E+08	1.620	10840.00
H+HCO(+M)<=>CH2O(+M)	1.090E+12	.480	-260.00
LOW / 1.350E+24 -2.570 1425.00/			
TROE/.7824 271.00 2755.00 6570.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+HCO<=>H2+CO	7.340E+13	.000	.00
H+CH2O(+M)<=>CH2OH(+M)	5.400E+11	.454	3600.00
LOW / 1.270E+32 -4.820 6530.00/			
TROE/.7187 103.00 1291.00 4160.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+CH2O(+M)<=>CH3O(+M)	5.400E+11	.454	2600.00
LOW / 2.200E+30 -4.800 5560.00/			
TROE/.7580 94.00 1555.00 4200.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+CH2O<=>HCO+H2	2.300E+10	1.050	3275.00
H+CH2OH(+M)<=>CH3OH(+M)	1.800E+13	.000	.00
LOW / 3.000E+31 -4.800 3300.00/			
TROE/.7679 338.00 1812.00 5081.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+CH2OH<=>H2+CH2O	2.000E+13	.000	.00
H+CH2OH<=>OH+CH3	1.200E+13	.000	.00
H+CH2OH<=>CH2(S)+H2O	6.000E+12	.000	.00
H+CH3O(+M)<=>CH3OH(+M)	5.000E+13	.000	.00
LOW / 8.600E+28 -4.000 3025.00/			
TROE/.8902 144.00 2838.00 45569.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+CH3O<=>H+CH2OH	3.400E+06	1.600	.00
H+CH3O<=>H2+CH2O	2.000E+13	.000	.00
H+CH3O<=>OH+CH3	3.200E+13	.000	.00
H+CH3O<=>CH2(S)+H2O	1.600E+13	.000	.00

H+CH3OH<=>CH2OH+H2	1.700E+07	2.100	4870.00
H+CH3OH<=>CH3O+H2	4.200E+06	2.100	4870.00
H+C2H(+M)<=>C2H2(+M)	1.000E+17	-1.000	.00
LOW / 3.750E+33 -4.800 1900.00/			
TROE/ .6464 132.00 1315.00 5566.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+C2H2(+M)<=>C2H3(+M)	5.600E+12	.000	2400.00
LOW / 3.800E+40 -7.270 7220.00/			
TROE/ .7507 98.50 1302.00 4167.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+C2H3(+M)<=>C2H4(+M)	6.080E+12	.270	280.00
LOW / 1.400E+30 -3.860 3320.00/			
TROE/ .7820 207.50 2663.00 6095.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+C2H3<=>H2+C2H2	3.000E+13	.000	.00
H+C2H4(+M)<=>C2H5(+M)	1.080E+12	.454	1820.00
LOW / 1.200E+42 -7.620 6970.00/			
TROE/ .9753 210.00 984.00 4374.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+C2H4<=>C2H3+H2	1.325E+06	2.530	12240.00
H+C2H5(+M)<=>C2H6(+M)	5.210E+17	-.990	1580.00
LOW / 1.990E+41 -7.080 6685.00/			
TROE/ .8422 125.00 2219.00 6882.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H+C2H5<=>H2+C2H4	2.000E+12	.000	.00
H+C2H6<=>C2H5+H2	1.150E+08	1.900	7530.00
H+HCCO<=>CH2(S)+CO	1.000E+14	.000	.00
H+CH2CO<=>HCCO+H2	5.000E+13	.000	8000.00
H+CH2CO<=>CH3+CO	1.130E+13	.000	3428.00
H+HCCOH<=>H+CH2CO	1.000E+13	.000	.00
H2+CO(+M)<=>CH2O(+M)	4.300E+07	1.500	79600.00
LOW / 5.070E+27 -3.420 84350.00/			
TROE/ .9320 197.00 1540.00 10300.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
OH+H2<=>H+H2O	2.160E+08	1.510	3430.00
2OH(+M)<=>H2O2(+M)	7.400E+13	-.370	.00
LOW / 2.300E+18 -.900 -1700.00/			
TROE/ .7346 94.00 1756.00 5182.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
2OH<=>O+H2O	3.570E+04	2.400	-2110.00
OH+HO2<=>O2+H2O	2.900E+13	.000	-500.00
OH+H2O2<=>HO2+H2O	1.750E+12	.000	320.00
DUPLICATE			
OH+H2O2<=>HO2+H2O	5.800E+14	.000	9560.00
DUPLICATE			
OH+C<=>H+CO	5.000E+13	.000	.00
OH+CH<=>H+HCO	3.000E+13	.000	.00
OH+CH2<=>H+CH2O	2.000E+13	.000	.00
OH+CH2<=>CH+H2O	1.130E+07	2.000	3000.00
OH+CH2(S)<=>H+CH2O	3.000E+13	.000	.00
OH+CH3(+M)<=>CH3OH(+M)	6.300E+13	.000	.00
LOW / 2.700E+38 -6.300 3100.00/			
TROE/ .2105 83.50 5398.00 8370.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
OH+CH3<=>CH2+H2O	5.600E+07	1.600	5420.00
OH+CH3<=>CH2(S)+H2O	2.501E+13	.000	.00
OH+CH4<=>CH3+H2O	1.000E+08	1.600	3120.00
OH+CO<=>H+CO2	4.760E+07	1.228	70.00
OH+HCO<=>H2O+CO	5.000E+13	.000	.00
OH+CH2O<=>HCO+H2O	3.430E+09	1.180	-447.00
OH+CH2OH<=>H2O+CH2O	5.000E+12	.000	.00
OH+CH3O<=>H2O+CH2O	5.000E+12	.000	.00
OH+CH3OH<=>CH2OH+H2O	1.440E+06	2.000	-840.00
OH+CH3OH<=>CH3O+H2O	6.300E+06	2.000	1500.00
OH+C2H<=>H+HCCO	2.000E+13	.000	.00
OH+C2H2<=>H+CH2CO	2.180E-04	4.500	-1000.00

OH+C2H2<=>H+HCCOH	5.040E+05	2.300	13500.00
OH+C2H2<=>C2H+H2O	3.370E+07	2.000	14000.00
OH+C2H2<=>CH3+CO	4.830E-04	4.000	-2000.00
OH+C2H3<=>H2O+C2H2	5.000E+12	.000	.00
OH+C2H4<=>C2H3+H2O	3.600E+06	2.000	2500.00
OH+C2H6<=>C2H5+H2O	3.540E+06	2.120	870.00
OH+CH2CO<=>HCCO+H2O	7.500E+12	.000	2000.00
2H2O<=>O2+H2O2	1.300E+11	.000	-1630.00
DUPLICATE			
2H2O<=>O2+H2O2	4.200E+14	.000	12000.00
DUPLICATE			
H2O+CH2<=>OH+CH2O	2.000E+13	.000	.00
H2O+CH3<=>O2+CH4	1.000E+12	.000	.00
H2O+CH3<=>OH+CH3O	2.000E+13	.000	.00
H2O+CO<=>OH+CO2	1.500E+14	.000	23600.00
H2O+CH2O<=>HCO+H2O2	1.000E+12	.000	8000.00
C+O2<=>O+CO	5.800E+13	.000	576.00
C+CH2<=>H+C2H	5.000E+13	.000	.00
C+CH3<=>H+C2H2	5.000E+13	.000	.00
CH+O2<=>O+HCO	3.300E+13	.000	.00
CH+H2<=>H+CH2	1.107E+08	1.790	1670.00
CH+H2O<=>H+CH2O	1.713E+13	.000	-755.00
CH+CH2<=>H+C2H2	4.000E+13	.000	.00
CH+CH3<=>H+C2H3	3.000E+13	.000	.00
CH+CH4<=>H+C2H4	6.000E+13	.000	.00
CH+CO(+M)<=>HCCO(+M)	5.000E+13	.000	.00
LOW / 2.690E+28 -3.740 1936.00/			
TROE/ .5757 237.00 1652.00 5069.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
CH+CO2<=>HCO+CO	3.400E+12	.000	690.00
CH+CH2O<=>H+CH2CO	9.460E+13	.000	-515.00
CH+HCCO<=>CO+C2H2	5.000E+13	.000	.00
CH2+O2<=>OH+HCO	1.320E+13	.000	1500.00
CH2+H2<=>H+CH3	5.000E+05	2.000	7230.00
2CH2<=>H2+C2H2	3.200E+13	.000	.00
CH2+CH3<=>H+C2H4	4.000E+13	.000	.00
CH2+CH4<=>2CH3	2.460E+06	2.000	8270.00
CH2+CO(+M)<=>CH2CO(+M)	8.100E+11	.500	4510.00
LOW / 2.690E+33 -5.110 7095.00/			
TROE/ .5907 275.00 1226.00 5185.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
CH2+HCCO<=>C2H3+CO	3.000E+13	.000	.00
CH2(S)+N2<=>CH2+N2	1.500E+13	.000	600.00
CH2(S)+O2<=>H+OH+CO	2.800E+13	.000	.00
CH2(S)+O2<=>CO+H2O	1.200E+13	.000	.00
CH2(S)+H2<=>CH3+H	7.000E+13	.000	.00
CH2(S)+H2O(+M)<=>CH3OH(+M)	2.000E+13	.000	.00
LOW / 2.700E+38 -6.300 3100.00/			
TROE/ .1507 134.00 2383.00 7265.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
CH2(S)+H2O<=>CH2+H2O	3.000E+13	.000	.00
CH2(S)+CH3<=>H+C2H4	1.200E+13	.000	-570.00
CH2(S)+CH4<=>2CH3	1.600E+13	.000	-570.00
CH2(S)+CO<=>CH2+CO	9.000E+12	.000	.00
CH2(S)+CO2<=>CH2+CO2	7.000E+12	.000	.00
CH2(S)+CO2<=>CO+CH2O	1.400E+13	.000	.00
CH2(S)+C2H6<=>CH3+C2H5	4.000E+13	.000	-550.00
CH3+O2<=>O+CH3O	2.675E+13	.000	28800.00
CH3+O2<=>OH+CH2O	3.600E+10	.000	8940.00
CH3+H2O2<=>HO2+CH4	2.450E+04	2.470	5180.00
2CH3(+M)<=>C2H6(+M)	2.120E+16	-.970	620.00
LOW / 1.770E+50 -9.670 6220.00/			
TROE/ .5325 151.00 1038.00 4970.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
2CH3<=>H+C2H5	4.990E+12	.100	10600.00
CH3+HCO<=>CH4+CO	2.648E+13	.000	.00
CH3+CH2O<=>HCO+CH4	3.320E+03	2.810	5860.00
CH3+CH3OH<=>CH2OH+CH4	3.000E+07	1.500	9940.00

CH3+CH3OH<=>CH3O+CH4	1.000E+07	1.500	9940.00
CH3+C2H4<=>C2H3+CH4	2.270E+05	2.000	9200.00
CH3+C2H6<=>C2H5+CH4	6.140E+06	1.740	10450.00
HCO+H2O<=>H+CO+H2O	2.244E+18	-1.000	17000.00
HCO+M<=>H+CO+M	1.870E+17	-1.000	17000.00
H2/2.00/ H2O/ .00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
HCO+O2<=>HO2+CO	7.600E+12	.000	400.00
CH2OH+O2<=>HO2+CH2O	1.800E+13	.000	900.00
CH3O+O2<=>HO2+CH2O	4.280E+13	7.600	-3530.00
C2H+O2<=>HCO+CO	5.000E+13	.000	1500.00
C2H+H2<=>H+C2H2	4.070E+05	2.400	200.00
C2H3+O2<=>HCO+CH2O	3.980E+12	.000	-240.00
C2H4(+M)<=>H2+C2H2(+M)	8.000E+12	.440	88770.00
LOW / 7.000E+50 -9.310 99860.00/			
TROE/ .7345 180.00 1035.00 5417.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
C2H5+O2<=>HO2+C2H4	8.400E+11	.000	3875.00
HCCO+O2<=>OH+2CO	1.600E+12	.000	854.00
2HCCO<=>2CO+C2H2	1.000E+13	.000	.00
N+NO<=>N2+O	3.500E+13	.000	330.00
N+O2<=>NO+O	2.650E+12	.000	6400.00
N+OH<=>NO+H	7.333E+13	.000	1120.00
N2O+O<=>N2+O2	1.400E+12	.000	10810.00
N2O+O<=>2NO	2.900E+13	.000	23150.00
N2O+H<=>N2+OH	4.400E+14	.000	18880.00
N2O+OH<=>N2+HO2	2.000E+12	.000	21060.00
N2O(+M)<=>N2+O(+M)	1.300E+11	.000	59620.00
LOW / 6.200E+14 .000 56100.00/			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
HO2+NO<=>NO2+OH	2.110E+12	.000	-480.00
NO+O+M<=>NO2+M	1.060E+20	-1.410	.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
NO2+O<=>NO+O2	3.900E+12	.000	-240.00
NO2+H<=>NO+OH	1.320E+14	.000	360.00
NH+O<=>NO+H	5.000E+13	.000	.00
NH+H<=>N+H2	3.200E+13	.000	330.00
NH+OH<=>HNO+H	2.000E+13	.000	.00
NH+OH<=>N+H2O	2.000E+09	1.200	.00
NH+O2<=>HNO+O	4.610E+05	2.000	6500.00
NH+O2<=>NO+OH	1.280E+06	1.500	100.00
NH+N<=>N2+H	1.500E+13	.000	.00
NH+H2O<=>HNO+H2	2.000E+13	.000	13850.00
NH+NO<=>N2+OH	2.160E+13	-.230	.00
NH+NO<=>N2O+H	4.160E+14	-.450	.00
NH2+O<=>OH+NH	7.000E+12	.000	.00
NH2+O<=>H+HNO	4.600E+13	.000	.00
NH2+H<=>NH+H2	4.000E+13	.000	3650.00
NH2+OH<=>NH+H2O	9.000E+07	1.500	-460.00
NNH<=>N2+H	3.300E+08	.000	.00
NNH+M<=>N2+H+M	1.300E+14	-.110	4980.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
NNH+O2<=>HO2+N2	5.000E+12	.000	.00
NNH+O<=>OH+N2	2.500E+13	.000	.00
NNH+O<=>NH+NO	7.000E+13	.000	.00
NNH+H<=>H2+N2	5.000E+13	.000	.00
NNH+OH<=>H2O+N2	2.000E+13	.000	.00
NNH+CH3<=>CH4+N2	2.500E+13	.000	.00
H+NO+M<=>HNO+M	8.950E+19	-1.320	740.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
HNO+O<=>NO+OH	2.500E+13	.000	.00
HNO+H<=>H2+NO	4.500E+11	.720	660.00
HNO+OH<=>NO+H2O	1.300E+07	1.900	-950.00
HNO+O2<=>HO2+NO	1.000E+13	.000	13000.00
CN+O<=>CO+N	7.700E+13	.000	.00
CN+OH<=>NCO+H	4.000E+13	.000	.00
CN+H2O<=>HCN+OH	8.000E+12	.000	7460.00
CN+O2<=>NCO+O	6.140E+12	.000	-440.00
CN+H2<=>HCN+H	2.100E+13	.000	4710.00
NCO+O<=>NO+CO	2.350E+13	.000	.00
NCO+H<=>NH+CO	5.400E+13	.000	.00
NCO+OH<=>NO+H+CO	2.500E+12	.000	.00
NCO+N<=>N2+CO	2.000E+13	.000	.00

NC0+O2<=>N0+C02	2.000E+12	.000	20000.00
NC0+M<=>N+CO+M	8.800E+16	-.500	48000.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
NC0+NO<=>N2O+CO	2.850E+17	-1.520	740.00
NC0+NO<=>N2+C02	5.700E+18	-2.000	800.00
HCN+M<=>H+CN+M	1.040E+29	-3.300	126600.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
HCN+O<=>NCO+H	1.107E+04	2.640	4980.00
HCN+O<=>NH+CO	2.767E+03	2.640	4980.00
HCN+O<=>CN+OH	2.134E+09	1.580	26600.00
HCN+OH<=>HOCN+H	1.100E+06	2.030	13370.00
HCN+OH<=>HNCO+H	4.400E+03	2.260	6400.00
HCN+OH<=>NH2+CO	1.600E+02	2.560	9000.00
H+HCN+M<=>H2CN+M	1.400E+26	-3.400	1900.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
H2CN+N<=>N2+CH2	6.000E+13	.000	400.00
C+N2<=>CN+N	6.300E+13	.000	46020.00
CH+N2<=>HCN+N	2.857E+08	1.100	20400.00
CH+N2(+M)<=>HCNN(+M)	3.100E+12	.150	.00
LOW / 1.300E+25 -3.160 740.00/			
TROE/ .6670 235.00 2117.00 4536.00 /			
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
CH2+N2<=>HCN+NH	1.000E+13	.000	74000.00
CH2(S)+N2<=>NH+HCN	1.000E+11	.000	65000.00
C+NO<=>CN+O	1.900E+13	.000	.00
C+NO<=>CO+N	2.900E+13	.000	.00
CH+NO<=>HCN+O	5.000E+13	.000	.00
CH+NO<=>H+NCO	2.000E+13	.000	.00
CH+NO<=>N+HCO	3.000E+13	.000	.00
CH2+NO<=>H+HNCO	3.100E+17	-1.380	1270.00
CH2+NO<=>OH+HCN	2.900E+14	-.690	760.00
CH2+NO<=>H+HCNO	3.800E+13	-.360	580.00
CH2(S)+NO<=>H+HNCO	3.100E+17	-1.380	1270.00
CH2(S)+NO<=>OH+HCN	2.900E+14	-.690	760.00
CH2(S)+NO<=>H+HCNO	3.800E+13	-.360	580.00
CH3+NO<=>HCN+H2O	9.600E+13	.000	28800.00
CH3+NO<=>H2CN+OH	1.000E+12	.000	21750.00
HCNN+O<=>CO+H+N2	2.200E+13	.000	.00
HCNN+O<=>HCN+NO	2.000E+12	.000	.00
HCNN+O2<=>O+HCO+N2	1.200E+13	.000	.00
HCNN+OH<=>H+HCO+N2	1.200E+13	.000	.00
HCNN+H<=>CH2+N2	1.000E+14	.000	.00
HNCO+O<=>NH+CO2	9.800E+07	1.410	8500.00
HNCO+O<=>HNO+CO	1.500E+08	1.570	44000.00
HNCO+O<=>NCO+OH	2.200E+06	2.110	11400.00
HNCO+H<=>NH2+CO	2.250E+07	1.700	3800.00
HNCO+H<=>H2+NCO	1.050E+05	2.500	13300.00
HNCO+OH<=>NCO+H2O	4.650E+12	.000	6850.00
HNCO+OH<=>NH2+CO2	1.550E+12	.000	6850.00
HNCO+M<=>NH+CO+M	1.180E+16	.000	84720.00
H2/2.00/ H2O/6.00/ CH4/2.00/ CO/1.50/ CO2/2.00/ C2H6/3.00/			
HCNO+H<=>H+HNCO	2.100E+15	-.690	2850.00
HCNO+H<=>OH+HCN	2.700E+11	.180	2120.00
HCNO+H<=>NH2+CO	1.700E+14	-.750	2890.00
HOCN+H<=>H+HNCO	2.000E+07	2.000	2000.00
HCCO+NO<=>HCNO+CO	2.350E+13	.000	.00
CH3+N<=>H2CN+H	6.100E+14	-.310	290.00
CH3+N<=>HCN+H2	3.700E+12	.150	-90.00
NH3+H<=>NH2+H2	5.400E+05	2.400	9915.00
NH3+OH<=>NH2+H2O	5.000E+07	1.600	955.00
NH3+O<=>NH2+OH	9.400E+06	1.940	6460.00
END			

Annexe 2 : Les équations de Maxwell dans les milieux matériels

Dans la description ondulatoire du rayonnement, proposée par les équations de Maxwell, le rayonnement est une superposition d'ondes transverses monochromatiques de pulsation ω . Chaque onde, est portée par un couple de vecteurs (E, H), qui sont respectivement, le vecteur champ électrique et le vecteur champ d'excitation magnétique.

Les équations de maxwell s'appuient sur la constante diélectrique et la permittivité, auxquelles il faut ajouter deux vecteurs (Polarisation volumique P, et Aimantation volumique M) pour caractériser la présence de matière. Le système d'équation s'écrit alors :

$$\mathbf{rot}\mathbf{E} + \partial_t\mathbf{B} = \mathbf{0}$$

$$\mathit{div}\mathbf{D} = \rho_{\text{ex}}$$

$$\mathit{div}\mathbf{B} = 0$$

$$\mathbf{rot}\mathbf{H} - \partial_t\mathbf{D} = \mathbf{J}_{\text{ex}}$$

avec

$$\mathbf{D} = \epsilon_0\mathbf{E} + \mathbf{P}$$

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0} - \mathbf{M}$$

auxquels il faut rajouter des relations de passages en guise de conditions aux limites.

Annexe 3 : Rappels mathématiques

Inverse Gaussienne Une fonction inverse gaussienne \mathcal{I} est définie par, au maximum, deux paramètres a et b . Elle est la densité de probabilité d'une variable aléatoire x telle que :

$$f(x) = \mathcal{I}(x)_{a,b} = \sqrt{\frac{ab}{2\pi x^3}} \exp\left[-\frac{b}{2} \frac{(x-a)^2}{ax}\right] = a^{-1} \mathcal{I}(x/a)_{1,b} \quad (6.1)$$

Sa fonction de répartition est exprimée en termes d'une combinaison de loi normale Γ :

$$g(x) = \int_0^x du \mathcal{I}(u)_{a,b} = \Gamma\left[-\sqrt{\frac{b}{x/a}}(1-x/a)\right] + e^{2b}\Gamma\left[-\sqrt{\frac{b}{x/a}}(1-x/a)\right] \quad (6.2)$$

C'est avec l'algorithme de Michael (proposé en 1976) que l'on peut échantillonner la variable x selon la loi de probabilité $f(x)$:

- Une variable x_1 est générée aléatoirement avec la probabilité du χ^2 utilisant le paramètre a .
- Une variable x_2 est ensuite obtenue par :

$$x_2 = a \left(1 + \frac{x_1}{2b} - \sqrt{\frac{x_1}{b} + \left(\frac{x_1}{2b}\right)^2} \right)$$

- Pour achever la procédure, un test de Bernouilli permet de retenir avec une probabilité $P = a/(a + x_2)$ la valeur $x = x_2$ et la probabilité $1 - P$ la valeur $x = a^2/x_2$.

Fonction intégrale exponentielle Soit $E_n(x)$ une fonction intégrale exponentielle. Elle est définie par les intégrales suivantes :

$$\begin{aligned} E_n(x) &= \int_1^\infty dt t^{-n} \exp(-xt) \\ &= \int_0^1 du u^{n-2} \exp(-x/u) \end{aligned} \quad (6.3)$$

Dans le domaine des transferts radiatifs on utilise plutôt la seconde expression où u est en général remplacé par $\cos(\theta)$

Annexe 4 : Mise en oeuvre de la méthode CK

Pour tenir compte de la déformation du spectre du fait des hétérogénéités en concentration et température le long d'un chemin optique nous avons retenu l'hypothèse de Curtis-Godson cependant, nous avons fait usage de la méthode CK comme moyen d'exploration et de contrôle. Voici un aperçu technique de son utilisation.

Comme il a été expliqué au Chap. 4 l'utilisation de la méthode CK nécessite l'inversion de la fonction g (fonction de répartition de la loi de Malkmus). L'inversion numérique de la fonction g que nous avons testée est bien trop coûteuse en temps de calcul donc nous avons mis en place une méthode CK tabulée qui utilise des interpolations linéaires. On procède de la manière suivante :

Au point initial, caractérisé par un paramètre de séparation ϕ_1 , une valeur initiale a_1 de $a = \frac{\kappa}{\kappa}$ est générée aléatoirement selon les lois statistiques annoncées au paragraphe 4.2.2.2. La fonction de répartition $g_M(a; \phi, 1)$ correspondant au modèle de Malkmus est alors utilisée pour calculer $g = g_M(a_1; \phi_1, 1)$.

A chaque traversée de maille, on recontre une nouvelle valeur ϕ_2 du paramètre de séparation. On cherche alors à déterminer une valeur a_2 vérifiant $g = g_M(a_2; \phi_2, 1)$.

Pour cela on utilise une interpolation linéaire à partir de résultats d'inversion numérique de la fonction $g_M(a; \phi, 1)$, ce qui conduit à une fonction d'approximation $\tilde{a}(\phi, g)$. Cette fonction est alors utilisée pour estimer a_2 comme

$$a_2 = a_1 \frac{\tilde{a}(\phi_2, g)}{\tilde{a}(\phi_1, g)}$$

Pour finir voici quelques compléments concernant la procédure d'interpolation. Une procédure de dichotomie a été utilisée pour construire un tableau $a_{n,m}(g_n, \phi_m)$:

* pour 200 valeurs de ϕ : le découpage en ϕ est régulier selon la fonction $\ln(\phi)$ entre $\phi = 10^{-3}$ et $\phi = 10^{+3}$.

* pour 20 valeurs de g : le découpage en g est régulier selon la fonction $\sqrt{1-g}$ entre $g=0$ et $g=0.99$.

L'utilisation de cette méthode CK tabulée sera illustrée au chapitre résultats (Chap. 6).

Annexe 5 : Formules développées des termes correctifs α établis pour l'hypothèse de Curtis-Godson formulée en k-distributions.

L'objectif de cette note est de donner ici quelques éléments mathématiques concernant le calcul analytique des termes α_{vs} , α_{vv} , α_{vs}^{tot} et α_{vv}^{tot} dont les formules ont été posées dans le Chap.4.

Pour les termes α_{vs} et α_{vv} : Pour finir d'exprimer analytiquement ces termes comme le montrent leurs formules respectives dans le Chap.4, il reste à obtenir l'expression analytique des dérivées partielles première et seconde de la fonction de Malkmus par rapport aux abscisses curvilignes l_i et l_j du rayon de longueur l_{ij} .

$\frac{\partial_{l_i} f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})}$ s'obtient de manière analytique sans difficulté particulière par :

$$\frac{\partial_{l_i} f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} = \frac{\kappa_i(\phi_i - \phi_{CG})}{2\bar{\kappa}_{CG}} \left[\frac{1}{\phi_{CG}} - \frac{(a-1)^2}{a} \right] \quad (6.4)$$

La dérivée seconde s'obtient également sans difficulté de principe et s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial_{l_i} \partial_{l_j} f_M(a; 1, \phi_{CG})}{f_M(a; 1, \phi_{CG})} = & - \frac{\kappa_i(\phi_i - \phi_{CG})}{2\bar{\kappa}_{CG}} \frac{\kappa_j(\phi_j - \phi_{CG})}{2\bar{\kappa}_{CG}} \left[\frac{1}{\phi_{CG}} - \frac{(a-1)^2}{a} \right]^2 + \frac{2\bar{\kappa}_i \bar{\kappa}_j (\phi_i - \phi_{CG})(\phi_j - \phi_{CG})}{4\bar{\kappa}_{CG}^2 \phi_{CG}^2} \\ & - \left[\frac{1}{\phi_{CG}} - \frac{(a-1)^2}{a} \right] \bar{\kappa}_i \bar{\kappa}_j \frac{2\phi_{CG} - \phi_i - \phi_j}{2\bar{\kappa}_{CG}^2} \end{aligned} \quad (6.5)$$

Nous rappelons que selon les formules qui ont été établies dans le Chap.4, les dérivées partielles que nous venons de calculer sont utilisées aussi bien dans les formules pour le cas particulier d'un gaz que pour des mélanges de gaz.

Pour les coefficients intégrés α_{vs}^{tot} et α_{vv}^{tot} : Pour le cas des coefficients de correction moyens intégrés sur une bande étroite α_{vs}^{tot} et α_{vv}^{tot} , nous proposons les formules générales valables pour les mélanges de gaz. Tout calcul fait pour les mélanges de gaz on arrive aux formules suivantes.

En notant n l'indice qui repère un gaz et n_g le nombre total de gaz on peut écrire pour un échange entre le volume V_i et la surface S_j le coefficient correcteur de la bande sous la forme :

$$\alpha_{v_i s_j}^{tot} = \frac{N}{M}$$

avec N et M des sommations sur les coefficients A_{n_i} et B_{n_i} qui dépendent du gaz et dont les expressions sont données en dessous. On a : $N = \sum_{n=1}^{n_g} A_{n_i}$ et $M = \sum_{n=1}^{n_g} B_{n_i}$ où pour un gaz n :

$$A_{n_i} = \frac{-\bar{\kappa}_i}{\sqrt{1 + 2\frac{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}}{\phi_{CG}}}} \left[1 + \frac{1}{\bar{\kappa}_{CG}} \partial_{l_i}(\phi_{CG}) \left(1 + \frac{\bar{\kappa}_{CG} l_i}{\phi_{CG}} - \sqrt{1 + 2\frac{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}}{\phi_{CG}}} \right) \right] \quad (6.6)$$

$$B_{n_i} = \frac{-\bar{\kappa}_i}{\sqrt{1 + 2\frac{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}}{\phi_{CG}}}} \quad (6.7)$$

De même pour l'échange entre un volume V_i et un volume V_j le coefficient correcteur moyen sur une bande étroite peut écrire :

$$\alpha_{v_i v_j}^{tot} = \frac{C}{D}$$

avec C et D des combinaisons linéaires des coefficients A_{n_i} , B_{n_i} qui ont été exprimés précédemment et de leur dérivée partielle. On a : $C = \sum_{n=1}^{n_g} (\partial_{l_j} A_{n_i}) + \sum_{n=1}^{n_g} \sum_{\substack{p=1 \\ p \neq n}}^{n_g} A_{n_i} A_{p_j}$ et $D = \sum_{n=1}^{n_g} (\partial_{l_j} B_{n_i}) + \sum_{n=1}^{n_g} \sum_{\substack{p=1 \\ p \neq n}}^{n_g} B_{n_i} B_{p_j}$. Pour simplifier l'écriture des dérivées partielles de A et de B on adopte le système de notations suivant :

$$K = \frac{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}}{\phi_{CG}}$$

$$L = (1 + 2K)$$

$$M = \frac{\phi_{CG}\bar{\kappa}_j - \bar{\kappa}_j(\phi_j - \phi_{CG})}{\phi_{CG}^2}$$

Le calcul des dérivées partielles de A et B aboutit aux expressions suivantes qui viennent clore l'ensemble de nos calculs :

$$\begin{aligned} \partial_{l_j} A_{n_i} = & ML^{-3/2} \left(\bar{\kappa}_i^2 \frac{\phi_i - \phi_{CG}}{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}} \right) (1 + K - L^{-1/2}) \\ & - L^{-1/2} \left(\bar{\kappa}_i \bar{\kappa}_j \frac{\phi_i + \phi_j - 2\phi_{CG}}{(\bar{\kappa}_{CG} l_{ij})^2} (1 + K - L^{-1/2}) \right) \\ & - L^{-1/2} \left(\bar{\kappa}_i \frac{\phi_i - \phi_{CG}}{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}} (M - M.L^{-1/2}) \right) \end{aligned}$$

et,

$$\partial_{l_j} B_{n_i} = \frac{\bar{\kappa}_i \bar{\kappa}_j}{\phi_i} \left(1 + 2 \frac{\bar{\kappa}_{CG} l_{ij}}{\phi_i} \right)^{-3/2}$$

Table des figures

1.1	Les étapes menant à la mutation de l'ADN en présence de HAP [com (2000)]	12
1.2	Niveaux de formation de NO_x dans une flamme plane extrait de [Hall (1994)]	16
2.1	Schémas de flammes non-prémélangées à contre-courant	20
2.2	Schématisation de la formation des suies extrait de [Bockhorn (1994)]	27
2.3	Principales voies réactionnelles menant à la formation des suies [com (2000)]	28
2.4	Pourcentage de carburant converti en acétylène en fonction de la richesse dans une flamme de méthane [Warnatz... (1996)]	29
2.5	Schéma des étapes menant à la formation des agrégats de suie, extrait de [Reilly... (2000)]	29
2.6	Photo de suies extraite de [Bockhorn (1994)]	30
2.7	Schéma simplifié d'oxydation du méthane	35
2.8	Schéma de la flamme plane non-prémélangée à contre-courant	39
2.9	Profils d'une flamme à jets opposée air/méthane pur pour un taux d'étirement de $28,5\ s^{-1}$ et Evolution de sa température maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant	43
3.1	Différentes plages spectrales du rayonnement [Welty ()]	46
3.2	La luminance	47
3.3	Conservation de la luminance dans un volume	49

3.4	Spectre d'absorption synthétique obtenu par élargissement de raies prédéfinies de manière discrète	55
3.5	Fonction $f(\kappa)$ pour le spectre d'absorption synthétique de la Fig. 3.4	57
3.6	Calcul du terme source en un point P	60
3.7	Calcul du terme source d'un volume V_i	67
5.1	Lame de gaz entre deux plans parallèles	102
5.2	Nombre de réalisations aléatoires nécessaire en fonction de l'épaisseur optique pour obtenir une erreur relative de 1 %	108
5.3	Fonctions densité de probabilité (pdf) pour les tirages angulaires	108
5.4	Génération aléatoire de la position d'émission	111
5.5	Génération aléatoire de la position d'absorption	112
5.6	Echange entre une paroi et le système	114
5.7	Echange entre un volume et le système	115
5.8	Comparaison entre la densité de probabilité utilisée et la densité de probabilité idéale pour le tirage des bandes étroites	116
5.9	Profil parabolique de luminance $L_b(z) = 4z(1 - z)$	124
5.10	Profils de termes sources radiatifs volumiques par unité de $\Delta\eta$ pour $\phi = 10^{-2}$ et différents $\bar{\kappa} : 10^{-5}m^{-1}, 10^{-1}m^{-1}, 10^{+2}m^{-1}$ et $10^{+5}m^{-1}$	126
5.11	Courbes de termes sources radiatifs par unité de $\Delta\eta$ et leurs erreurs relatives pour la maille centrale	127
5.12	Courbes de termes sources radiatifs par unité de $\Delta\eta$ et leurs erreurs relatives pour la maille proche de la paroi (3^{eme} maille en partant de la paroi)	128
6.1	Géométrie cylindrique infiniment allongée	132
6.2	Géométrie cylindrique vue de dessus	133

6.3	Puissance radiative volumique dissipée - $X_{H_2O} = 0,1$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$	136
6.4	Différence relative avec le raie-par-raie pour la puissance radiative volumique dissipée - $X_{H_2O} = 0,1$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$. .	136
6.5	Flux à la paroi en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$	138
6.6	Différence relative du flux à la paroi par rapport au raie-par-raie en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 500 K$	138
6.7	Flux à la paroi en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 2500 K$	139
6.8	Différence relative du flux à la paroi par rapport au raie-par-raie en fonction de la distance entre elles deux - $X_{H_2O} = 0,155$ et $X_{CO_2} = 0,116$ - $P = 1atm$ - température parabolique, $T_c = 2500 K$	139
6.9	Localisation des profils sur un schéma en coupe verticale d'un demi-cylindre de hauteur infinie	141
6.10	Profils de vapeur d'eau et de température dans la couche limite pour le moteur-fusée	142
6.11	Termes sources radiatifs sur un demi-cylindre - Zoom sur la couche limite pariétale	142
6.12	Les profils d'une flamme à jets opposés air/méthane pur et l'évolution de sa température maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant	147
6.13	Contributions séparées aux termes sources radiatifs pour la flamme à $28,5 s^{-1}$ - Monte Carlo complet	148
6.14	Echanges radiatifs volume/volume	149
6.15	Procédure de couplage numérique entre le code de combustion et le code radiatif Monte Carlo	151

6.16 Terme source couplé en utilisant le TLM - Son erreur relative par rapport à un calcul de contrôle par Monte Carlo	153
6.17 Evolution de la température maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant	155
6.18 Evolution de la fraction de NO maximale en fonction d'un taux d'étirement décroissant - Un zoom est proposé à droite	155

Bibliographie

- [Abraham... (1997)] **Abraham John et Magi Vinicio** Application of the discrete ordinates method to compute radiant heat loss in a diesel engine, *Numerical Heat Transfer, Part A* (1997). 31(6) :597–610.
- [Adams... (1995)] **Adams B.R. et Smith P.J.** Modelling effects of soot and turbulent-radiation coupling on radiative transfer in turbulent gaseous combustion, *Combustion Science and Technology* (1995). 109 :121–140.
- [Behrendt... (1991)] **Behrendt F. et Warnatz J.** Simulation of partially premixed methane-air counterflow-diffusion flames and comparison with experimental results, *Progress in Astronautics and Aeronautics* (1991). 131.
- [Beltrame... (2001)] **Beltrame A., Porshnev P., Merchan-Merchan W., Saveliev A., Fridman A., Kennedy L. A., Petrova O., Zhdanok S., Amouri F. et Charon O.** Soot and no formation in methane-oxygen enriched diffusion flames, *Combustion and flame* (2001). 124 :295–310.
- [Bicocchi (1998)] **Bicocchi S.** (1998) *Les polluants et les techniques d'épuration de fumées*. Lavoisier TEC et DOC.
- [Blasenbrey... (2000)] **Blasenbrey T. et Maas U.** Ildms of higher hydrocarbons and the hierarchy of chemical kinetics, *Twenty-Eighth International Symposium on Combustion - in press* (2000).
- [Blevins... (1998)] **Blevins L.G. et Gore J.P.** Computed structure of low strain rate partially premixed ch_4 /air counterflow flames : Implications for no formation, *Combustion and Flame* (1998). 116 :546–566.
- [Bockhorn (1994)] Bockhorn H., editor (1994) *Soot formation in combustion*. Springer-Verlag.

-
- [Bonne (1971)] **Bonne U.** Radiative extinguishment of diffusion flames at zero gravity, *Combustion and Flames* (1971). 16 :147–159.
- [Borghi... (1995)] **Borghi R. et Destriau M.** (1995) *La combustion et les flammes*. Technip.
- [Bowman... (1999 last visited)] **Bowman C.T.,Hanson R.K.,Davidson D.F.,Gardiner W.C.,Lissianski Jr.V.,Smith G.P.,Golden D.M.,Frenklach M. et Goldenberg M.** Grimech 2.11. "[http ://www.berkeley.edu/gri_mech](http://www.berkeley.edu/gri_mech)", (1999 last visited).
- [Bressloff... (1997)] **Bressloff N.W.,Moss J.B. et Rubini P.A.** Differential total absorptivity solution to the radiative transfer equation for mixtures of combustion gases and soot, *Numerical Heat Transfer, Part B* (1997). 31 :43–60.
- [Bressloff (1999)] **Bressloff N.W.** The influence of soot loading on weighted sum of grey gases solutions to the radiative transfer equation across mixtures of gases and soot, *International Journal of Heat and Mass transfer* (1999). 42(18) :3469–3480.
- [Burke... (1928)] **Burke S.P. et Schumann T.E.W** Diffusion flames, *Industrial Engineering Chemistry* (1928). 10 :998.
- [Calcotte (1981)] **Calcotte H.F.** Mechanisms of soot nucleation in flames - a critical review, *Combustion and Flame* (1981). 42 :215–242.
- [Carvalho... (1991)] **Carvalho M.G. et Nogueira M.** *Heat Transfer in Radiating and Combusting Systems*, page 374. Springer and Verlag. Carvalho et al.,eds edition, (1991).
- [Carvalho... (1998)] **Carvalho M.G. et Farias T.L.** Modelling of heat transfer in radiating and combusting systems, *Trans IChemE* (1998). 76, part A :175–184.
- [Chan... (1995)] **Chan S.H.,Pan X.C. et Abou-Ellail M.M.M.** Flamelet structure of radiating ch4-air flames, *Combustion and flame* (1995). 102 :438–446.
- [Chao... (1993)] **Chao B.H. et Law C.K.** Asymptotic theory of flame extinction with surface radiation, *Combustion and Flame* (1993). 92 :1–24.
- [Cherkaoui... (1996)] **Cherkaoui M.,Dufresne J-L.,Fournier R.,Grandpeix J-Y. et Lahellec A.** Monte carlo simulation of radiation in gases with a narrow-band model and a net-exchange formulation, *Journal of Heat Transfer* (1996). 118 :401–407.
- [Cherkaoui... (1998)] **Cherkaoui M.,Dufresne J-L.,Fournier R.,Grandpeix J-Y. et Lahellec A.** Radiative net exchange formulation within one dimensional gas enclosures with reflective surfaces, *Journal of Heat Transfer* (1998). 120 :275–278.

-
- [clean air act (1997)] **clean air act**. Clean air act, section 112(c)(6), specific pollutants. Technical report, A-97-05, EPA, (1997).
- [Clergent (2000)] **Clergent Y.** *Influence du rayonnement thermique sur les écoulements de convection naturelle en espace confiné*. PhD thesis, Université Paul Sabatier - Toulouse, (2000).
- [Coelho... (1995)] **Coelho P.J. et Carvalho M.G.** Evaluation of a three-dimensional model for the prediction of heat transfer in power station boilers, *International journal of energy research* (1995). 19 :579–592.
- [Coelho... (1996)] **Coelho P.J. et Carvalho M.G.** Evaluation of a three-dimensional mathematical model of a power station boiler, *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power* (October 1996). 118 :887–895.
- [com (2000)] Modélisation détaillée des flammes, incinération lits fluidisée incendie, formation et destruction des polluants. volume 2. 7ième Ecole de Combustion, Mont St Odile ALSACE, (2000).
- [Cuenot (1995)] **Cuenot B.** *Etude Asymptotique et numérique de la structure des flammes de diffusion laminaires et turbulentes*. PhD thesis, C.E.R.F.A.C.S, (1995).
- [Dagusé... (1993)] **Dagusé T.,Soufiani A.,Darabiha N. et Rolon J.C.** Structure of diffusion and premixed laminar counterflow flames including molecular radiative transfer, *Fizika Goreniya i Vzryva* (1993). 29 :55–60.
- [Dagusé... (1996)] **Dagusé T.,Croonenbroek T.,Rolon J.C.,Darabiha N. et Soufiani A.** Study of radiative effects on laminar counterflow h₂/o₂/n₂ diffusion flames, *Combustion and Flame* (1996). 106 :271–287.
- [Dagusé (1996)] **Dagusé T.** *Effets du rayonnement thermique sur la structure de flammes laminaires de diffusion ou de prémélange en phase gazeuse*. PhD thesis, Ecole Centrale, Paris, (1996).
- [Dalzell... (1969)] **Dalzell W. H. et Sarofim A. F.** Optical constants of soot and their application to heat-flux calculations, *Journal of Heat Transfer* (1969). 52 :100–104.
- [Darabiha... (1988)] **Darabiha N.,Candel S.M.,Giovangigli V. et Smooke M.D.** Extinction of strained premixed propane-air flame with complex chemistry, *Combustion Science and Technology* (1988). 60 :267–285.

-
- [Darabiha... (1992)] **Darabiha N. et Candel S.** The influence of the temperature on the extinction and ignition limits of strained hydrogen-air diffusion flames, *Combustion Science and Technology* (1992). 86 :67–85.
- [Darabiha (1992)] **Darabiha N.** Transient behaviour of laminar counterflow hydrogen-air diffusion flames with complex chemistry, *Combustion Science and Technology* (1992). 86 :163–181.
- [de Guilhem de Lataillade... (2001)] **de Guilhem de Lataillade A., El Hafi M., Fournier R. et Dufresne J.L.** In *5th International Conference on Technologies and Combustion for Clean Environment 1999, Accepté pour publication 2001*. Gordon and Breach, (2001).
- [de Lataillade... (2001)] **de Lataillade A., El Hafi M., Fournier R. et Dufresne J.L.** k-distribution net exchange monte-carlo simulations of gaseous infrared radiation, *Pour être soumis à JQSRT* (2001).
- [Denison... (1995)] **Denison M. et Webb B.** The spectral line-based weighted-sum-of-gray-gases model in nonisothermal nonhomogeneous media, *Journal of Heat Transfer* (1995). 117 :359–365.
- [Denison (1993)] **Denison M.K.** A spectral line-based weighted-sum-of-gray-gases model for arbitrary rte solvers, *Transactions of the ASME* (1993). 115 :1004–1012.
- [Desjardin... (1999)] **Desjardin P.E. et Frankel S.H.** Two-dimensional large eddy simulation of soot formation in the near-field of a strongly radiating nonpremixed acetylene-air turbulent jet flame, *Combustion and flame* (1999). 119 :121–132.
- [Desroches Ducarne... (1998)] **Desroches-Ducarne E., Dolignier J.C., Marty E., Martin G. et Delfosse L.** Modelling of gaseous pollutants emissions in circulating fluidized bed combustion of municipal refuse, *Fuel* (1998). 77 :1399–1410.
- [Dixon Lewis... (1984)] **Dixon-Lewis G., David T., Gaskell P.H., Fukutani S., Jinno H., Miller J.A., Kee R.J., Smooke M.D., Peters N., Effelsberg E., Warnatz J. et Behrendt F.** Calculation of the structure and extinction limit of a methane-air counterflow diffusion flame in the forward stagnation region of a porous cylinder. In *20th Symposium (International) on Combustion*, pages 1893–1904, (1984).
- [Dixon Lewis... (1988)] **Dixon-Lewis G. et Islam S.M.** Structure and extinction of counterflow diffusion flames of hydrogen-nitrogen mixtures in air, *22th International Symposium on Combustion* (1988). pages 1461–1470.

-
- [Dixon Lewis (1990)] **Dixon-Lewis G.** Structure of laminar flames, *Twenty-third (International) Symposium on Combustion* (1990). pages 305–324.
- [Domoto (1974)] **Domoto G.A.** Frequency integration for radiative transfer problems involving homogeneous non-gray gases : the inverse transmission function, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1974). 14 :935–942.
- [Dufresne... (1998)] **Dufresne J-L., Fournier R. et Grandpeix J-Y.** Méthode de monte carlo par échanges pour le calcul des bilans radiatifs au sein d’une cavité 2d remplie de gaz, *Compte-Rendu Académie des Sciences* (1998). 326 :33–38.
- [Dufresne... (1999)] **Dufresne J-L., Fournier R. et Grandpeix J-Y.** Inverse gaussian k-distributions, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1999). 61 :433–441.
- [Dutre (1995)] **Dutre P.** *Mathematical frameworks and monte-carlo algorithms for global illumination in computer graphics*. PhD thesis, Katholieke universiteit leuven, Heverlee, (1995).
- [Dutre (1996)] **Dutre P.** *Mathematical frameworks and Monte Carlo algorithms for global illumination in computer graphics*. PhD thesis, Université Catholique de Louvain - Belgique, (1996).
- [Edwards... (1972)] **Edwards D. K. et Balakrishnan A.** Volume interchange factors for nonhomogeneous gases, *Journal of Heat Transfer* (1972). pages 181–188.
- [Egolfopoulos... (1996)] **Egolfopoulos F.N. et Campbell C.S.** Unsteady counterflowing strained diffusion flames : diffusion-limited frequency response, *Journal of Fluid Mechanics* (1996). 318 :1–29.
- [Egolfopoulos (1994)] **Egolfopoulos F.N.** Geometric and radiation effects on steady and unsteady laminar flames. In *25th Symposium (International) on Combustion*, pages 1375–1381. Combustion Institute, (1994).
- [Ern... (1995)] **Ern A. et Giovangigli V.** Fast and accurate multicomponent transport property evaluation, *Journal of Computational Physics* (1995). 120 :105–116.
- [Eymet (2000)] **Eymet V.** Etude de l’effet de la diffusion par les agrégats de suie sur le transfert radiatif dans les chambres de combustion. Technical report, Mines d’Albi, (2000).
- [Farias (1997)] **Farias T.L.** *Evaluation of light scattering for fractal aggregates*. PhD thesis, Institut supérieur technique de Lisbonne - Portugal, (1997).

-
- [Farmer... (1994a)] **Farmer J.T. et Howell J.R.** Hybrid monte carlo/ diffusion method for enhanced solution of radiative transfer in optically thick non-gray media, *Radiative Transfer : Current Research*, Y. Bayazitloglu et al., eds. ASME, New York (1994). 276 :203–212.
- [Farmer... (1994b)] **Farmer J.T. et Howell J.R.** Monte carlo algorithms for predicting radiative heat transport in optically thick participating media. In *Proc. 10th International Heat Transfer Conference*, volume 2, pages 37–42, Brighton, (1994).
- [Fournier (1994)] **Fournier R.** Rayonnement thermique dans les gaz : analyse de couplage avec la convection naturelle, *These de l'Universite Paul Sabatier* (1994).
- [Frank... (2000)] **Frank J.H, Barlow R.S. et Lundquist C.** Radiation and nitric oxide formation in turbulent nonpremixed jet flame, *28th International Symposium on Combustion* (2000). à paraître.
- [Frenklach... (1988)] **Frenklach M. et Wang H.** Detailed modelling of soot nucleation and growth, *23th International Symposium on Combustion* (1988). page 1559.
- [Garcia... (1996)] **Garcia C., Tanoff M.A., Smooke M.D. et Hall R.J.** Application of non-optically thin radiation model to the study of low-strain laminar counterflow flames, *Chemical and physical processes in combustion eastern states section, combustion institute 1996 DEC Hilton head* (1996). pages 305–308.
- [Gerstell (1993)] **Gerstell M.F.** Obtaining the cumulative k-distribution of a gas mixture from those of its components, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1993). 49 :15–38.
- [Goody (1989)] **Goody Y.** (1989) *Atmospheric Radiation theoretical basis*.
- [Gore... (1988)] **Gore J.P. et Faeth G.M.** Structure and radiation properties of luminous turbulent acetylene/air diffusion flames, *Journal of Heat Transfer* (1988). 110 :173–181.
- [Gouyet (1996)] **Gouyet J.F.** (1996) *Physics and Fractal Structures*. Masson.
- [Green (1967)] **Green J. S. A.** Division of radiative streams into internal transfer and cooling to space, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* (1967). 93 :371–372.
- [Grosshandler (1993)] **Grosshandler W.L.** Radcal : A narrow-band model for radiation calculations in a combustion environment, *NIST Technical note 1402* (1993).

-
- [Hall... (1997)] **Hall R.J., Smooke M.D. et Colket M.B.** Predictions of soot dynamics in opposed jet diffusion flames. In *Physical and chemical aspects of combustion*, pages 189–230. Glasmann et al edition, (1997).
- [Hall Roberts... (2000)] **Hall-Roberts V.J., Hayhurst A.N., Knight D.E. et Taylor S.G.** The origin of soot in flames : Is the nucleus an ion ?, *Combustion and Flame* (2000). 120 :578–584.
- [Hall (1993)] **Hall R. J.** The radiative source term for plane-parallel layers of reacting combustion gases, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1993). 49 :517–523.
- [Hall (1994)] **Hall R. J.** Radiative dissipation in planar gas-soot mixtures, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1994). 51 :635–644.
- [Halton (1970)] **Halton J.H.** A retrospective and prospective survey of the monte carlo method, *SIAM review* (1970). 12 :1–63.
- [Hammersley... (1967)] **Hammersley J.M. et Hanoscomb D.S.** (1967) *Les méthodes de Monte Carlo*.
- [Hottel... (1967)] **Hottel H. C. et Sarofim A. F.** Radiative transfer, *McGraw-Hill Book Company* (1967).
- [Howard (1988)] **Howard J.B.** Carbon addition and oxidation reactions in heterogeneous combustion and soot formation, *23th International Symposium on Combustio* (1988). page 1107.
- [Howell (1988)] **Howell J. R.** Thermal radiation in participating media : the past, the present, and some possible futures, *Journal of Heat Transfer* (1988). 110 :1220–1229.
- [Hubbard... (1978)] **Hubbard G.L. et Tien C.L.** *ASME Journal of Heat Transfert* (1978). 100(235).
- [Jander... (1990)] **Jander H. et Wagner H.G.** Soot formation in combustion - an international round table discussion. In *Soot formation in combustion, H. Bochorn*. Springer-verlag edition, (1990).
- [Jones... (1988)] **Jones W.P. et Lindstedt R.P.** Global reaction schemes for hydrocarbon combustion, *Combustion and Flame* (1988). 73 :233–249.
- [Julien... (1987)] **Julien R. et Botet R.** (1987) *Aggregation and fractal aggregates*. World scientific.

-
- [Kaplan... (1996)] **Kaplan C.R., Shaddix C.R. et Smyth K.C.** Computational of enhanced soot production in time-varying CH_4/air diffusion flames, *Combustion and Flame* (1996). 106 :392–405.
- [Kee... (1986)] **Kee R.J., Dixon-Lewis G., Warnatz J., Coltrin M.E. et Miller J.A.** A fortran computer package for the evaluation of gas-phase multicomponent transport properties, *Sandia National Laboratories, Rept SAND86-8246* (1986).
- [Kee... (1988)] **Kee R.J., Miller J.A., Evans G.H. et Dixon-Lewis G.** A computational model of the structure and extinction of stretched opposed flow premixed methane-air flames, *Twenty-second (International) Symposium on Combustion* (1988). pages 1479–1494.
- [Kee... (1989)] **Kee R., Rupley F.M. et Miller J.A.** Chemkin ii : A fortran package for the analysis of gas-phase chemical kinetics, *Sandia National Laboratories, Rept SAND89-8009B* (1989).
- [Kennedy (1997)] **Kennedy I.M.** Models of soot formation and oxidation, *Progress in energy and combustion science* (1997). 23 :95–132.
- [Langu  nou... (1994)] **Langu  nou E., Chelle M. et Bouatouch K.** Simulation d'  clair  ment dans un environnement contenant des milieux semi-transparents. Technical report, IRISA, publication interne n    800, (1994).
- [Law... (1992)] **Law C.K. et Egolfopoulos F.N.** *24th International Symposium on Combustion* (1992). pages 137–144.
- [Lee... (1981)] **Lee S.C. et Tien C.L.** Optical constants of soot in hydrocarbon flames, *Eighteenth Symposium (International) on Combustion* (1981). pages 1159–1166.
- [Leung... (1991)] **Leung K. M., Lindstedt R. P. et Jones W. P.** A simplified reaction mechanism for soot formation in non-premixed flames, *Combustion and Flame* (1991). 87 :289–305.
- [Leung... (1995)] **Leung K.M. et Lindstedt R.P.** Detailed kinetic modeling C_1 C_3 alkane diffusion flame - review, *Combustion and Flame* (1995). 102 :129–160.
- [Lindstedt (1992)] **Lindstedt P.** A simple reaction mechanism for soot formation in non-premixed flames. In *Aerothermodynamics in Combustion*, pages 145–156. R.S. Lee and J.H. Whitelaw and T.S. Wungs, springer-verlag edition, (1992).

-
- [Lindstedt (1994)] **Lindstedt P.R.** Simplified soot nucleation and surface growth steps for non-premixed flames. In *Soot formation in combustion*, H. Bockhorn. Springer-verlag : Series in chemical physics 59 edition, (1994).
- [Liu... (1991)] **Liu Y. et Rogg B.** Modelling of thermally radiating diffusion flames with detailed chemistry and transport, *Heat Transfer in Radiating and Combusting Systems - 17th Seminar Eurotherm* (1991). pages 114–127.
- [Liu (1999)] **Liu F.** Numerical solutions of three-dimensional non-grey gas radiative transfer using the statistical narrow-band model, *Transactions of the ASME* (February 1999). 121 :200–203.
- [Liñan (1974)] **Liñan A.** The asymptotic structure of counterflow diffusion flame for large activation energies, *Acta Astronautica* (1974). 1 :1007.
- [Maas (1998)] **Maas U.** Efficient calculation of intrinsic low-dimensional manifolds for the simplification of chemical kinetics, *Computing and Visualization in Science* (1998). 1 :69–81.
- [MacKeown (1997)] **MacKeown P.K.** (1997) *Stochastic Simulation in Physics*. Springer Verlag.
- [Malkmus (1967)] **Malkmus W.** Random lorentz band model with exponential-tailed s-1 line-intensity distribution function, *Journal of Optical Society of America* (1967). 57 :323–329.
- [Mandelbrot (1995)] **Mandelbrot B.** (1995) *Les Objets Fractals*.
- [Modest (1993)] **Modest M.F.** (1993) *Radiative heat transfer*. Mc Graw-Hill Series in Mechanical Engineering.
- [Mukadi... (2000)] **Mukadi L., Guy C. et Legros R.** Prediction of gas emissions in an internally circulating fluidized bed combustor for treatment of industrial solid wastes, *Fuel* (2000). 79 :1125–1136.
- [Nasserzadeh... (1991)] **Nasserzadeh V., Swithenbank J. et Jones B.** Three-dimensional modelling of a municipal solid-waste incinerator, *Journal of the Institute of Energy* (1991). 64 :166–175.
- [Neeft... (1996)] **Neeft J.P.A., Makkee M. et Moulijn J.A.** Diesel particulate emission control, *Fuel Processing Technology* (1996). 47 :1–69.

-
- [Negrelli... (1977)] **Negrelli D.E., Lloyd J.R. et Novotny J.L.** A theoretical and experimental study of radiation-convection interaction in a diffusion flame, *Journal of Heat Transfer* (1977). 99 :212–220.
- [Olsommer... (1997a)] **Olsommer B., von Spakovsky M. et Favrat D.** Transfert de chaleur par rayonnement dans un four d'incinérateur industriel : application de la méthode des zones, *revue générale de thermique* (1997). 36 :125–134.
- [Olsommer... (1997b)] **Olsommer Benoit, Spakovsky Michael Von et Favrat Daniel** Transfert de chaleur par rayonnement dans un four d'incinération industriel : application de la méthode des zones, *Rev. Gen. Therm.* (1997). 36 :125–134.
- [Osuwan (1972)] **Osuwan S.** Mathematical simulation radiative heat transfer cylindrical test furnace, *Canadian journal of chemical engineering* (1972). 50 :450–455.
- [Peters (1986)] **Peters N.** Laminar flamelet concepts in turbulent combustion, *Twenty first symposium (International) on Combustion* (1986). page 1231.
- [Pierrot... (1999a)] **Pierrot L., Rivière Ph., Soufiani A. et Taine J.** A fictitious-gas-based absorption distribution function global model for radiative transfer in hot gases, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1999). 62 :609–624.
- [Pierrot... (1999b)] **Pierrot L., Soufiani A. et Taine J.** Accuracy of narrow-band and global models for radiative transfer in h_2o , co_2 , and h_2o-co_2 mixtures at high temperature, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1999). 62 :523–548.
- [Pierrot (1997)] **Pierrot L.** *Développement, étude critique et validation de modèles de propriétés radiatives infrarouges de CO_2 et H_2O à haute température. Applications au calcul des transferts dans les chambres aéronautiques et à la télédétection.* PhD thesis, Centrale PARIS, (1997).
- [Puri... (1994)] **Puri R., Santoro R. J. et Smyth K. C.** *Combustion and flame* (1994). 97 :125.
- [Rabl... (1998)] **Rabl Ari, Spadaro Joseph V. et Gavran Patricia D. Mc** Effets sur la santé de la pollution atmosphérique due aux incinérateurs-une perspective, *Sciences et Techniques* (1998). (9) :4–22.
- [Reilly... (2000)] **Reilly P.T.A., Gieray R.A., Whitten W.B. et Ramsey J.M.** Direct observation of the evolution of the soot carbonization process in an acetylene diffusion

- flame via real-time aerosol mass spectrometry, *Combustion and Flame* (2000). 122 :90–104.
- [Rutland... (1994)] **Rutland C.J., Eckhause J., Hampson G., Hessel R., Kong S., Patterson M., Pierpont D., Seetland P., Tow T. et Reitz R.D.** Toward predictive modeling of diesel engine intake flow, *Combustion and Emissions SAE Paper 941897* (1994).
- [Shin... (2000)] **Shin D. et Choi S.** The combustion of simulated waste particles in a fixed bed, *Combustion and Flame* (2000). 121 :167–180.
- [Siegel... (1992)] **Siegel R. et Howell J. H.** Thermal radiation heat tranfert, *Hemisphere publishing corporation, Third Edition* (1992).
- [Sivathanu... (1994)] **Sivathanu Y.R. et Gore J.P.** Coupled radiation and soot kinetics calculations in laminar acetylene/air diffusion flames, *Combustion and Flame* (1994). 97 :161–172.
- [Sivathanu... (1997)] **Sivathanu Y.R. et Gore J.P.** Effects of gas-band radiation on soot kinetics in laminar methane/air diffusion flames, *Combustion and Flame* (1997). 110 :256–263.
- [Smooke... (1986)] **Smooke M.D., Puri I.K. et Seshadri K.** A comparison between numerical calculation and experimental measurements of the structure of a counterflow diffusion flame burning methane in diluted air, *21th International Symposium on Combustion* (1986). pages 1783–1792.
- [Smooke... (1996)] **Smooke M. D., Ern A., Tanoff M.A., Valdati B.A., Mohammed R.K., Marran D.F. et Long M.B.** *Twenty-sixth (International) Symposium on Combustion* (1996). pages 2161–2170.
- [Smooke... (1999)] **Smooke M. D., Mcenally C. S. et Pfefferle L. D.** Computational and experimental study of soot formation in a coflow, laminar diffusion flame, *Combustion and Flame* (1999). 117 :117–139.
- [Soufiani... (1985)] **Soufiani A., Hartmann J.M. et Taine J.** Validity of band-model calculations for CO_2 and H_2O applied to radiative properties and conductive-radiative transfer, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* (1985). 33 :243–257.

-
- [Soufiani... (1994)] **Soufiani A. et Djavdan E.** A comparison between weighted sum of gray gases and statistical narrow-band radiation models for combustion applications, *Combustion and Flame* (1994). 97 :240–250.
- [Soufiani... (1997)] **Soufiani A. et Taine J.** High temperature gas radiative property parameters of statistical narrow-band model for h_2o , co_2 and co , and correlated-k model for h_2o and co_2 , *Technical note in International Journal of Heat and Mass Transfer* (1997). 40 :987–991.
- [Spalding (1957)] **Spalding D.B.** *Proceeding of Royal Society, Londres* (1957). page 83.
- [Surzhikov... (1998)] **Surzhikov S. T. et Howell J.** Monte carlo simulation of radiation in scattering volumes with line structure, *AIAA J. of Thermophysics and Heat Trans* (1998). 12 :278–281.
- [Taine... (1998)] **Taine J. et Soufiani A.** Gas ir radiatives properties : From spectroscopic data to apprtximate models. In *Advances in Heat Transfer*, volume 33, pages 295–414. (1998).
- [Tessé... (2000a)] **Tessé L.,Dupoirieux F.,Taine J. et Zamuner B.** Communication personnelle sur les questionsde couplage avec une combustion turbulente (2000).
- [Tessé... (2000b)] **Tessé L.,Dupoirieux F.,Taine J. et Zamuner B.** Simulation of radiative transfer in real gases using a monte-carlo method and a correlated-k approach, *Private communication and manuscript submitted for publication in International Journal of Heat and Mass Transfer* (2000).
- [Thynell (1998)] **Thynell Stephan T.** Discrete-ordinates method in radiative heat transfer, *International Journal of Engineering Science* (1998). 36 :1651–1675.
- [T'ien (1986)] **T'ien J.S.** Diffusion flame extinction at small stretch rates : the mechanism of radiative loss, *Combustion and flame* (1986). 65 :31–34.
- [Tsuji (1982)] **Tsuji H.** Counterflow diffusion flames, *Progress in Energy and Combustion Science* (1982). 8 :93–109.
- [Tucker... (1984)] **Tucker R.J. et Lorton R.** Mathematical modelling load recuperative gas fired furnaces, *Heat Tranfer - 1st national conference jul 1984 Leeds* (1984). 2 :1035–1046.
- [Vidal... (1994)] **Vidal C.,Dewel G. et Borckmans P.** Au-dela de l'équilibre, *Hermann* (1994).

-
- [Viskanta... (1987)] **Viskanta R. et Menguc M. P.** Radiation heat transfer in combustion systems, *Prog. Energy Combustion* (1987). 13 :97–160.
- [Vranos... (1993)] **Vranos A. et Hall R.J.** Influence of radiative loss on nitric oxide formation in counterflow diffusion flames at high pressure, *Combustion and Flame* (1993). 93 :230–238.
- [Walters... (1992)] **Walters D. V. et Buckius R. O.** Rigorous development for radiation heat transfer in nonhomogeneous absorbing, emitting and scattering media, *International Journal of Heat and Mass Transfer* (1992). 35 :3323–3333.
- [Warnatz... (1996)] **Warnatz J., Maas U. et Dibble R.W.** (1996) *Combustion*. Springer-Verlag.
- [Warnatz (1981)] **Warnatz J.** The structure of laminar alkane, alkene, and acetylene flames, *18th International Symposium on Combustion* (1981). page 369.
- [Welty ()] **Welty J.** *Engineering heat transfer*. UMI.
- [Wu... (1972)] **Wu P. et Libby P.A.** Further results on the stagnation point boundary layer with hydrogen injection, *Combustion Science and Technology* (1972). pages 159–168.
- [Yamaoka... (1986)] **Yamaoka I., Tsuji H. et Harigaya Y.** Extinction and structure of methane/very lean methane-air counterflow diffusion flames, *21st International Symposium on Combustion* (1986). pages 1837–1843.
- [Zeldovitch (1949)] **Zeldovitch J.B.** *Journal Technics Physics (URSS)* (1949). 19 :1199–1210.
- [Zhang (1999)] **Zhang H.** *An Experimental and Numerical Study of the Effects of Heat Loss and Unsteadiness on Laminar Strained Flames*. PhD thesis, University of South California, (1999).