

# Développement de diagramme de stabilité de flamme en combustion diluée

Erdinc SEZGIN\*, Barbara PESENTI, Delphine LUPANT, Paul LYBAERT

Université de Mons, Place du Parc, 20 – B-7000 Mons

Faculté Polytechnique, Service de Thermique et Combustion, Rue de l'Épargne, 56 – B-7000 Mons

\* (auteur correspondant : Erdinc.Sezgin@umons.ac.be)

**Résumé** - La combustion diluée (ou MILD Combustion, Flameless Oxidation,...) est une technique de combustion qui permet de combiner un rendement de combustion élevé, une meilleure uniformité du transfert de chaleur et de faibles niveaux d'émissions polluantes ( $\text{NO}_x$ ). L'objectif de ce travail est d'établir des diagrammes de stabilité en combustion diluée pour des combustibles alternatifs (mélange de  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}$ ) issus notamment de la gazéification de la biomasse ou de la valorisation de sous-produits industriels. Ce papier présente les premières campagnes d'essais avec le méthane comme combustible de référence. Cet article présente également la modélisation de la chambre à l'aide d'outils CFD et aussi par un modèle simplifié à l'aide de réacteurs idéaux.

## Nomenclature

$K_v$     taux de recirculation  
 $Q$      débit massique  
 $E$      excès d'oxygène  
 $T$      température  
 $C$      chaleur spécifique

*Symboles grecs*  
 $\lambda$     richesse  
*Indices et exposants*  
*stoic*   stœchiométrique

## 1. Introduction

Dans le domaine de la combustion, l'économie d'énergie passe généralement par la récupération de la chaleur perdue dans les fumées pour préchauffer l'air de combustion alimentant les brûleurs. Ce préchauffage a également pour effet d'accroître les températures maximales atteintes dans la flamme. Or, la formation d'oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) augmente sensiblement avec la température. Pour répondre à ce problème et permettre l'utilisation d'air fortement préchauffé en maintenant de faibles niveaux d'émissions de  $\text{NO}_x$ , de nouvelles techniques de combustion ont été développées basées sur un mode de combustion appelé combustion diluée ou 'oxydation sans flamme'. Le principe de cette technique est de mélanger le comburant et/ou le combustible avec des gaz brûlés avant le début de la combustion. Ce mode de fonctionnement est souvent caractérisé par un préchauffage de l'air de combustion et par une recirculation importante des gaz brûlés. Cette technique de combustion est particulièrement intéressante dans la réduction des émissions des  $\text{NO}_x$  d'origine thermique (thermal  $\text{NO}_x$ ), grâce à la réduction des gradients thermiques importants dans la chambre de combustion qui évitent la formation des points chauds [1].

Les recirculations internes des fumées dans un four sont souvent quantifiées par le taux de recirculation  $K_v$  [1] :

$$K_v = \frac{Q_{\text{Fumées de recirculation}}}{Q_{\text{Combustible}} + Q_{\text{air}}} \quad (1)$$

La combustion diluée nécessite le préchauffage de la chambre de combustion à une température supérieure à la température d'inflammation du mélange et un taux de recirculation  $K_v$  supérieur à un seuil. Bien que les conditions et les effets de cette combustion sont connus et étudiés dans la littérature scientifique, peu d'information est disponible

concernant l'utilisation de combustible autres que le gaz naturel et le méthane. Or, les recherches s'orientent actuellement vers l'utilisation de combustibles "alternatifs" dans le cadre de la combustion diluée. Ces combustibles sont constitués de mélanges de CO, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> principalement, résultant de la gazéification de biomasse, ou de la valorisation de sous-produits provenant d'autres procédés (gaz de hauts-fourneaux par exemple).

L'objectif de ce travail est de déterminer par une étude expérimentale les domaines de stabilité de la combustion diluée pour des mélanges de combustibles gazeux présentant un intérêt industriel pour une large plage de température et de niveau de dilution. Les différents régimes de combustion seront caractérisés par la teneur en imbrûlés dans les fumées, les émissions de NO<sub>x</sub>, la forme et la position de la zone de réaction. Une campagne d'essais de référence a été réalisée avec le méthane comme combustible, afin de valider la méthodologie et le banc d'essais par comparaison avec la littérature scientifique.

## 2. Description de l'installation expérimentale

Dans les installations industrielles utilisant l'oxydation sans flamme, la recirculation est obtenue aérodynamiquement par une injection des réactifs à haute vitesses et suivant une géométrie spécifique. Dans notre étude, afin de faciliter l'expérimentation et les simulations numériques, la recirculation sera réalisée artificiellement en diluant les réactifs avant leur entrée dans la chambre de combustion par un gaz inerte. De cette manière, la quantité de gaz inerte ajoutée (appelé le diluant) déterminera le niveau de dilution. La chambre de combustion conçue pour cette étude expérimentale est cylindrique, de section circulaire, et présente deux accès optiques diamétralement opposés. Une couche d'isolant permet de réduire les pertes. Une vue en coupe de cette chambre est représentée sur la figure 2. La hauteur et le diamètre de cette chambre sont respectivement de 1200 mm et 50mm. Une configuration co-courant a été choisi pour l'injection des réactifs. Le combustible est injecté via un tube en alumine de 3mm de diamètre isolé thermiquement pour éviter le craquage (figure 3). Le comburant est injecté à travers une section annulaire de diamètre extérieur et intérieur de 35 et 15mm (figure 3). Cette installation est équipée d'un préchauffeur électrique qui permet le préchauffage du comburant jusqu'à 1100°C.

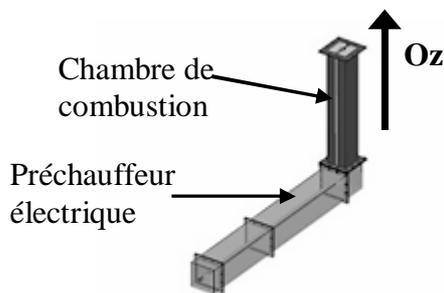


Figure 1 : Banc d'essai

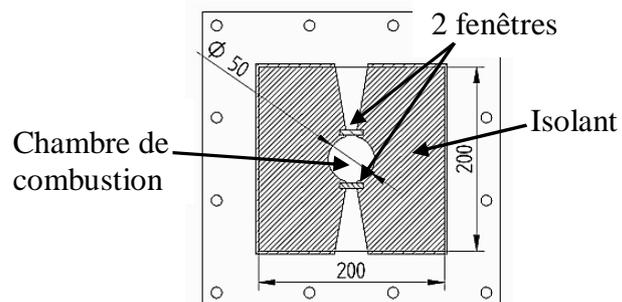


Figure 2 : Vue en coupe de la chambre

L'installation est munie de différents capteurs et instruments de mesure qui permettent de déterminer la température des gaz à l'entrée et à la sortie de la chambre, ainsi que la composition des gaz de combustion (O<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO, CO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub>). Une station de mélange équipée de contrôleurs de débits massiques permet de régler les proportions du mélange réactif dilué entrant dans le système. Une caméra CCD intensifiée équipée d'un filtre UV permet une cartographie d'émission spontanée des radicaux OH. La chimiluminescence du radical OH est en général considérée comme un bon marqueur de la zone de réaction et de l'intensité du dégagement de chaleur engendré par la combustion [2].

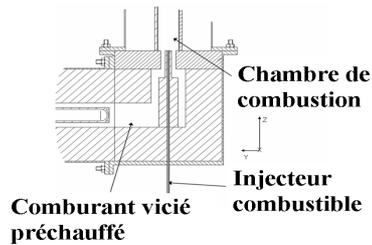


Figure 3 : Tronçon de sortie du préchauffeur : vue en coupe

### 3. Résultats et discussions

Plusieurs campagnes d'essais ont été réalisées en faisant varier les paramètres opératoires tels que la température de préchauffage du comburant dilué (de 950°C à 1050°C), la quantité de diluant, l'excès d'oxygène. L'excès d'oxygène est défini comme étant la quantité d'O<sub>2</sub> supplémentaire par rapport à la quantité stœchiométrique. Le taux de dilution sera caractérisé par le taux de recirculation K<sub>v</sub> :

$$K_v = \frac{Q_{\text{diluant}}}{Q_{\text{Combustible}} + Q_{\text{air}}} \quad (2)$$

où Q<sub>diluant</sub> est le débit du diluant ajouté pour reproduire les effets de la recirculation

#### 3.1. Classification des régimes de combustion

Le régime de combustion est caractérisé en tenant compte des paramètres suivants :

- aspect de la zone de réaction : visible ou non, stable en position ou non
- chimiluminescence de la zone de réaction : largeur et valeur maximum du profil d'intensité
- quantité d'espèces imbrûlées à la sortie de la chambre (CH<sub>4</sub>, CO)
- émissions de NO<sub>x</sub>.

Différents régimes de combustion ont été observés :

1. Combustion avec flammes : régime caractérisé par une flamme visible très lumineuse mais instable avec une intensité des émissions OH importante, des émissions de NO<sub>x</sub> élevées (de l'ordre de 70 ppm) et des émissions de CO et CH<sub>4</sub> proches de zéro à la sortie
2. Combustion diluée : régime caractérisé par une flamme quasiment invisible, une zone de réaction stable en position, des intensités d'émission OH plus faibles que dans le mode 1. Les émissions de NO<sub>x</sub> sont faibles (de l'ordre de 20 ppm) et les émissions de CO restent inférieures à 100ppm
3. Combustion fortement diluée : les conditions sont similaire au régime 2 mis à part une augmentation des émissions de CO (200ppm < CO < 400ppm)
4. Absence de réaction

La figure 4 représente le diagramme des régimes de combustion correspondant aux campagnes d'essais réalisées avec un excès d'oxygène de 5%, en fonction de la température de préchauffage et du taux de recirculation K<sub>v</sub>. La température de préchauffage est la température du comburant vicié (air + azote de dilution) mesurée à la sortie du préchauffeur. Dans la littérature scientifique, les résultats sont généralement reportés en fonction d'une température moyenne dans la chambre de combustion, en supposant que celle-ci représente la température des fumées de recirculation se mélangeant avec les réactifs avant la réaction. Afin de comparer les résultats de cette étude avec les données disponibles dans la littérature, le

diagramme des régimes de combustion sera donc représenté en fonction de la température de mélange (figure 5) calculée comme étant la température thermodynamique de mélange du combustible et comburant vicié. Cette température est calculée comme étant la température du mélange combustible et comburant vicié en tenant compte de leur température et débit respectifs (équation 3).

$$(Q_1c_1 + Q_2c_2 + Q_3c_3) T_{mélange} = (Q_1c_1 + Q_2c_2)T_{préch} + Q_3c_3T_3 \quad (3)$$

Les indices 1,2 et 3 correspondent respectivement à l'O<sub>2</sub>, à l'N<sub>2</sub> et au CH<sub>4</sub>.

La température (T3) utilisée dans la relation (3) correspond à la température du combustible à l'entrée de la chambre de combustion, c'est-à-dire à la sortie de l'injecteur de combustible ; elle n'est pas mesurée directement mais est obtenue par calcul en considérant les transferts de chaleur entre le combustible et le comburant préchauffé dans le tronçon de sortie du préchauffeur (voir figure 3).

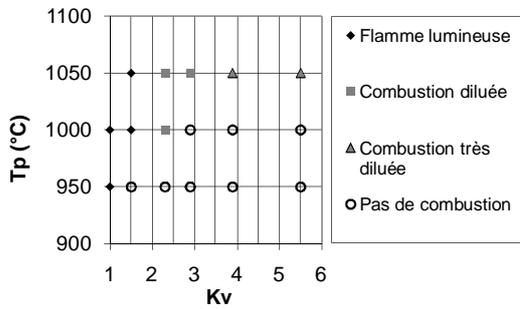


Figure 4 : Diagramme de stabilité du CH<sub>4</sub> fonction de la température de préchauffage

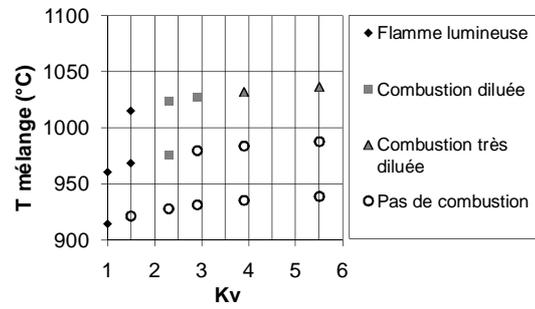


Figure 5 : Diagramme de stabilité du CH<sub>4</sub> fonction de la température de mélange

### 3.2. Excès global d'oxygène

Les mesures effectuées au cours de cette étude ont montré que l'excès d'oxygène global est un paramètre important qui influence le régime de combustion. Or, l'excès d'oxygène est rarement mentionné dans les diagrammes disponibles dans la littérature. De plus, lorsque la combustion diluée est obtenue par recirculation aérodynamique dans une chambre de combustion, les fumées diluant les réactifs contiennent de l'oxygène résiduel. Dans ce cas, le rapport combustible/comburant dans la zone de réaction dépend à la fois de l'excès d'air introduit par les réactifs et du taux de recirculation. On voit qu'il est donc nécessaire d'introduire l'excès d'O<sub>2</sub> dans les diagrammes représentant les régimes de combustion.

Ce nouveau paramètre est défini par les relations suivantes :

$$\lambda = \frac{\left( \frac{Q_{O_2}}{Q_{fuel}} \right)}{\left( \frac{Q_{O_2}}{Q_{fuel}} \right)_{stoic}} = \frac{Q_{O_2(tot)}}{Q_{O_2(stoic)}} \quad (4)$$

Dans notre installation expérimentale, la dilution est réalisée par dilution directe des réactifs par ajout de gaz inerte. Ce rapport d'oxygène ne dépend donc que de l'excès d'O<sub>2</sub> dans le mélange injecté dans la chambre de combustion (équation 5).

$$\lambda = (1 + E) \quad (5)$$

E = excès d'oxygène dans le mélange dilué (cette étude)

Lorsque la dilution est obtenue par recirculation, ce paramètre  $\lambda$  dépend également du taux de recirculation  $K_v$  par la relation 6.

$$\lambda = 1 + E_r(1 + K_v) \quad (6)$$

$E_r$  = excès d'oxygène introduit dans les réactifs non dilués (cas d'une dilution par recirculation)

### 3.3. Comparaison avec la littérature

Les résultats de cette étude ont été comparés avec ceux de Derudi et al. [3] : la combustion sans flamme est considérée comme atteinte lorsque l'émission lumineuse visible de la flamme disparaît et que les niveaux d'émission de  $\text{NO}_x$  et de CO sont respectivement inférieurs à 30ppm et 50ppm. L'excès d' $\text{O}_2$  global par rapport à la stœchiométrie est situé entre 2% et 3% dans l'étude de [3]. La figure 6 compare les résultats de [3] avec les résultats de cette étude dans un diagramme de régimes de stabilité en trois dimensions. On peut voir que les conditions de combustion diluée de cette étude sont bien incluses dans les limites de l'étude de [3].

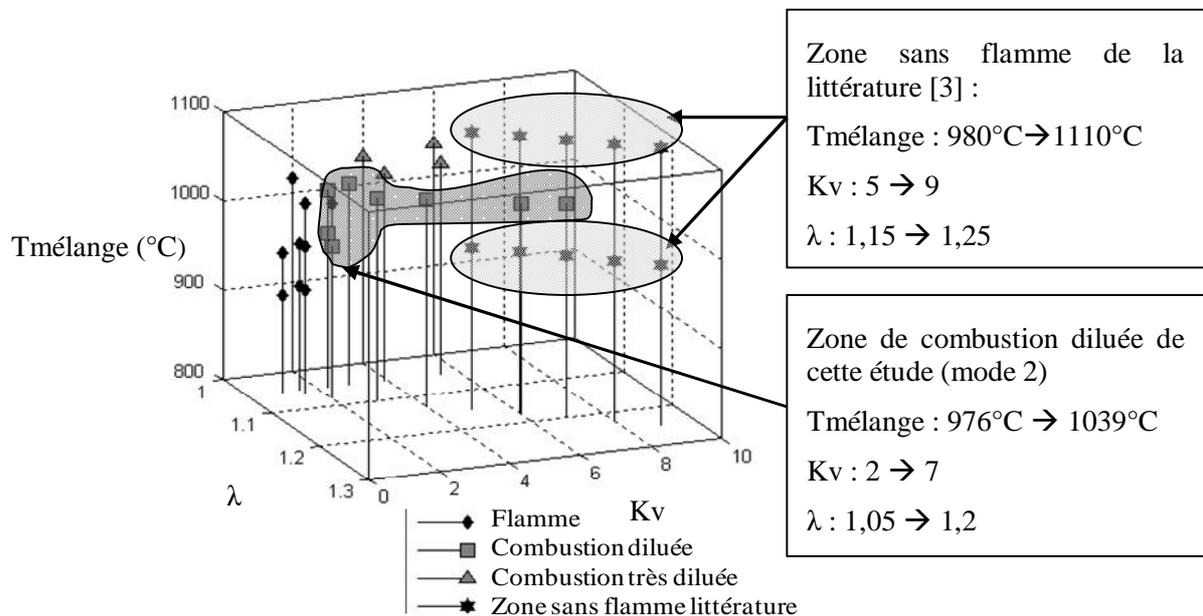


Figure 6 : Diagramme de stabilité 3D

## 4. Etude numérique

La simulation numérique de la chambre de combustion a été réalisée avec le logiciel de CFD FLUENT®. La bonne prédiction de la simulation dépend du bon choix du modèle de combustion. Deux modèles ont été étudiés : l'Eddy Dissipation/Finite Rate (ED/FR) et l'Eddy Dissipation Concept (EDC) [4]. L'ED/FR ne convient pas pour des mécanismes cinétiques détaillés. Ce modèle a été associé à un mécanisme réduit à 2 étapes (CO comme espèce intermédiaire) [5]. Les  $\text{NO}_x$  ont été calculés par post-traitement avec les modèles standards de FLUENT (thermal et prompt  $\text{NO}_x$ ). L'EDC a été utilisé avec un mécanisme cinétique détaillé à 279 réactions et 49 espèces (GRI2.11 [6]). Le modèle de turbulence choisi est le 'Standard k- $\epsilon$ ' et le modèle de rayonnement est le 'Discrete Ordinates' [4].

Une autre approche de modélisation a également été testée à l'aide du logiciel commercial COSILAB, qui permet un calcul détaillé de la cinétique chimique relative à la combustion

dans des réacteurs-types standards où sont appliqués les principes fondamentaux de conservation de la thermodynamique. Dans cette approche, la chambre de combustion est assimilée à un réacteur idéal de type « piston », représenté dans le module PFR (Plug Flow Reactor) du logiciel. Le mécanisme GRI-Mech 3.0 [6] avec 53 espèces et 325 réactions a été utilisé dans les simulations réalisées avec COSILAB.

Le tableau 1 compare les émissions de NO<sub>x</sub> mesurées avec les valeurs calculées par FLUENT et COSILAB. Les NO<sub>x</sub> prédits par FLUENT avec le mécanisme réduit (ED/FR) sont sévèrement sous-estimés. Par contre, les prévisions de FLUENT avec un mécanisme plus détaillé restent acceptables comparées aux valeurs mesurées. Malgré la simplicité du modèle d'écoulement piston, les émissions de NO<sub>x</sub> sont également très correctement calculées par COSILAB.

Kv	T <sub>préch</sub>	NO <sub>x</sub> (ppm, à 3% O <sub>2</sub> , sur base sèche)			
		Expérimental	Cosilab	FLUENT ED/FR	FLUENT EDC
1	950°C	75	115	9	113
2,9	1000°C	4	8	0	18
1,5	1000°C	67	77	2	37
2,9	1050°C	21	12	0	16
3,9	1050°C	13	9	0	10

Tableau 1 : Emission des NO<sub>x</sub>

## 5. Conclusions

Cet article a présenté les premières campagnes d'essais réalisées sur un banc d'essais de laboratoire pour la caractérisation de la combustion diluée. Les résultats de cette étude sont concordants avec les données disponibles dans la littérature pour le méthane. Cette première étude a mis en évidence la nécessité d'inclure la température de mélange et l'excès d'O<sub>2</sub> dans les diagrammes caractéristiques des régimes de combustion.

La suite de l'étude expérimentale permettra d'obtenir des diagrammes opératoires pour des mélanges de CH<sub>4</sub>, CO et H<sub>2</sub>.

## Références

- [1] J.A. Wüning and J.G. Wüning, *Flameless oxidation to reduce thermal NO-formation*, Progress in Energy and Combustion Science, 23(12):81-94,1997
- [2] Hardalupas Y., Orain M., *Local measurements of the time-dependent heat release rate and equivalence ratio using chemiluminescent emission from a flame*, Combustion and Flame 139 (2004) 188-207
- [3] Marco Derudi, Alessandro Villani, Renato Rota, *Sustainability of mild combustion of hydrogen-containing hybrid fuels*, Proceedings of the Combustion Institute 31 (2007) 3393-3400
- [4] Ansys 12.0 / Fluent, *User's Guide*
- [5] Westbrook C.K., Dryer F.L., *Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames*, Combust. Sci. and Tech., 27:31-43, 1981
- [6] [www.me.berkeley.edu/gri\\_mech/](http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/)

## Remerciements

Cette étude a pu être réalisée grâce au soutien financier de la région Wallonne dans le cadre de l'Annexe « Energy Conservation and Emissions Reduction in Combustion » de l'AIE