



# Étude et mesure de paramètres pertinents dans un écoulement réactif

Nicolas GASCOIN

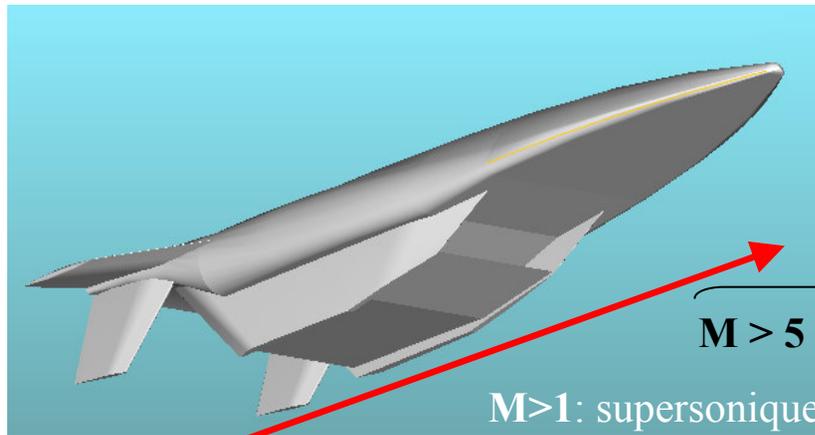
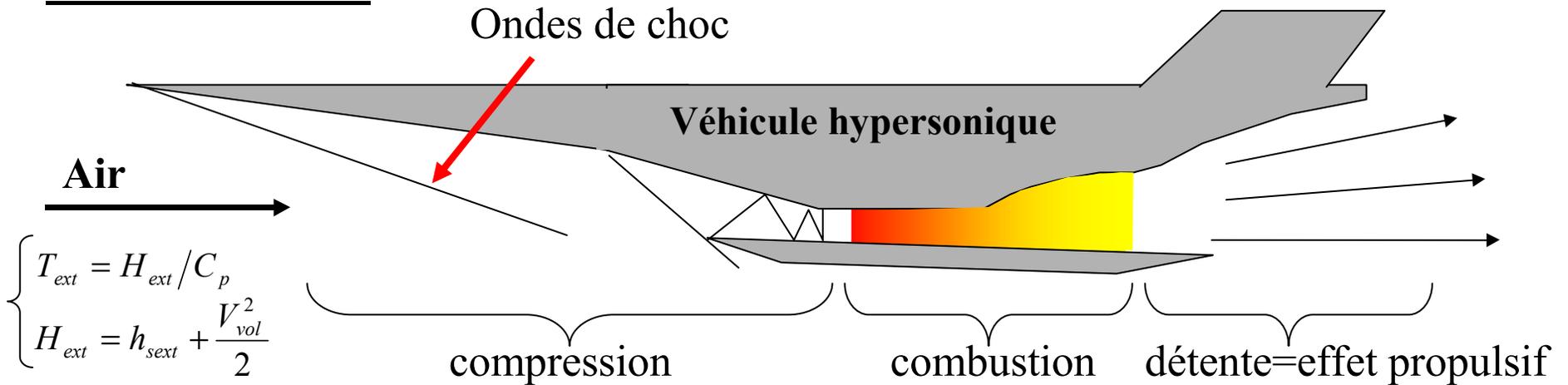
Soutenue publiquement le 30 Novembre 2006 à 9h30 heures

Lieu : IUT de Bourges – Amphithéâtre Charost

Directeurs de Thèse : Pr. Philippe GILLARD

Pr. Youssoufi TOURE

## Le statoréacteur:



$M < 1$  : subsonique

$M = 1$  : sonique

$M > 1$  : supersonique

$M > 5$  : hypersonique

Combustion supersonique

Combustion subsonique

- **Mach initial de vol > 2**
- **Domaine de vol: Mach 2 à 15**
- **Altitude de vol : 10 à 40 km**
- **M = 1 : mur du son**
- **M = 5 : mur de la chaleur (1400°C)**

$$\text{Mach de vol} = \frac{\text{Vitesse de vol}}{\text{Vitesse locale du son}}$$





## Problématique du refroidissement:

*Après décomposition du carburant, quelle poussée ?*

- Quelle **composition** chimique ?  $\Rightarrow$  paramètres influents et importances respectives
- Quelle **combustion** pour ces espèces ?  $\Rightarrow$  relation combustion-composition
- Quelle **quantité** ?  $\Rightarrow$  mesure du débit massique à chaud du fluide décomposé
  - $\hookrightarrow$  Aspects industriels appliqués (méthodes de mesure)
- A terme : régulation du système

### Composition

Paroi chaude + Carburant froid = Décomposition endothermique

Décomposition endothermique = Fluide énergétique

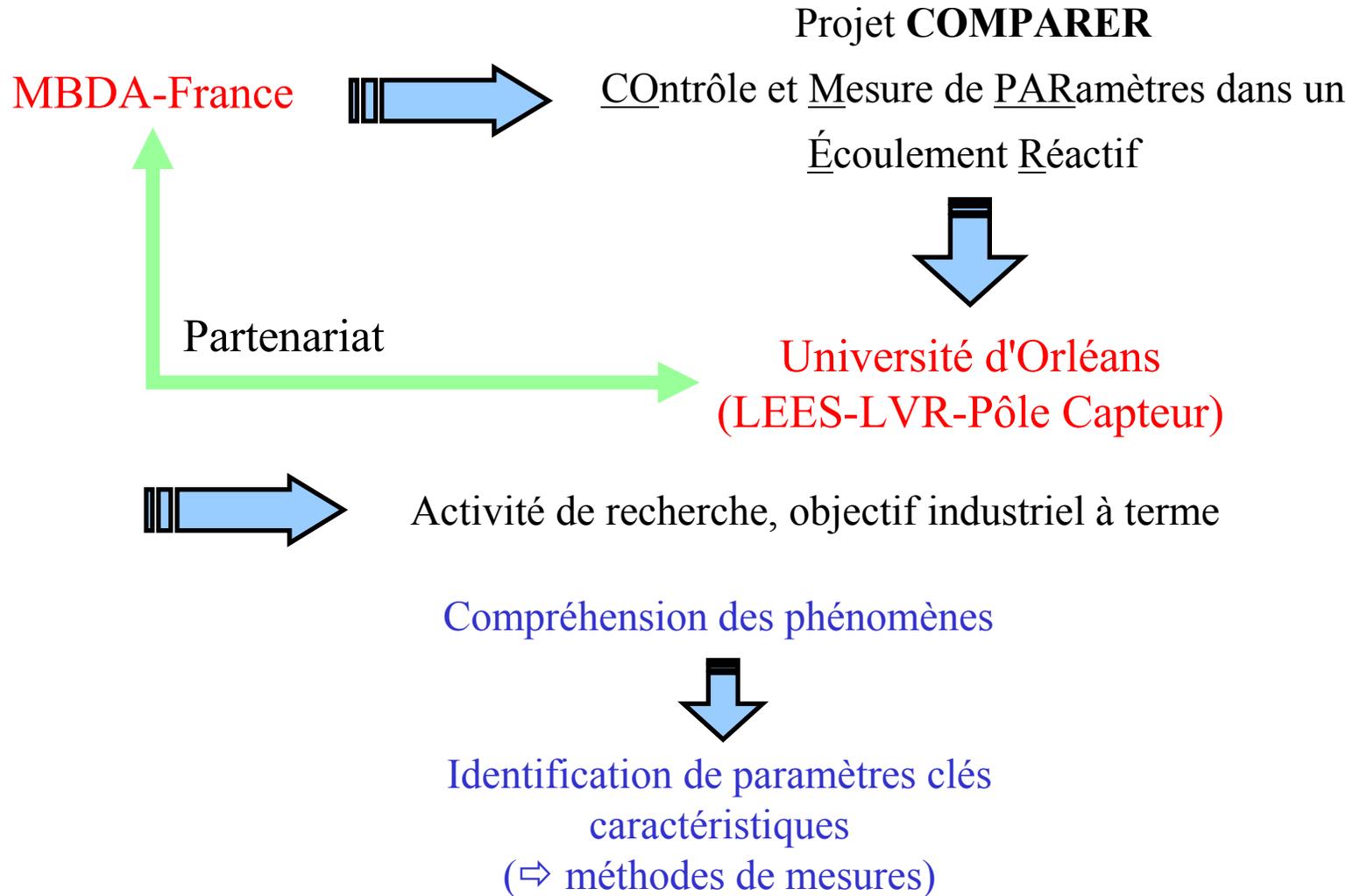
### Combustion

Débit massique + Fluide énergétique = Poussée moteur

### Quantification

**Pyrolyse = Décomposition thermique**

## Cadre de la thèse :



Propulsion hypersonique



Refroidissement moteur

Combustion



Pyrolyse du carburant



Caractérisation



Numérique - Expérimental



Couplage de phénomènes



Paramètres clés



Mesures embarquables

## Plan de la soutenance

- **Introduction, présentation**
  - Le statoréacteur et le vol hypersonique
  - Problématique et solution technologique
  - Objectifs du travail de thèse
- **Outils numériques stationnaire & transitoire**
  - Fluide supercritique
  - Modélisation transitoire
  - Validation
- **Banc expérimental**
- **Résultats et discussions**
  - Pyrolyse à l'état stationnaire
  - Complémentarité simulation - expérimentation
- **Conclusions**

## Choix du carburant d'étude [1]:

### n-dodécane

↪ Formule chimique :  $C_{12}H_{26}$

↪ Masse molaire :  $170,34 \text{ g.mol}^{-1}$

↪  $T_{\text{ébullition}}$  :  $489,44 \text{ K}$  (1 bar)

↪  $T_{\text{critique}}$  :  $658,1 \text{ K}$

↪  $P_{\text{critique}}$  :  $18,17 \text{ bars}$

↪ Masse volumique :  $749 \text{ kg.m}^{-3}$  (1 bar, 293 K)

- Représentativité
- Composé pur
- Mécanisme cinétique disponible

+ mécanisme réactionnel complet [2] :  
**1185 réactions, 153 espèces**



**Modélisation  
monodimensionnelle  
(1-D)**

[1] Heinrich B., Luc-Bouhali A., Ser F., Vigot C., (2001) "Carburants liquides endothermiques: problématique du refroidissement et projet d'études expérimentales à l'ONERA", *AAAF*, 15\_012P.

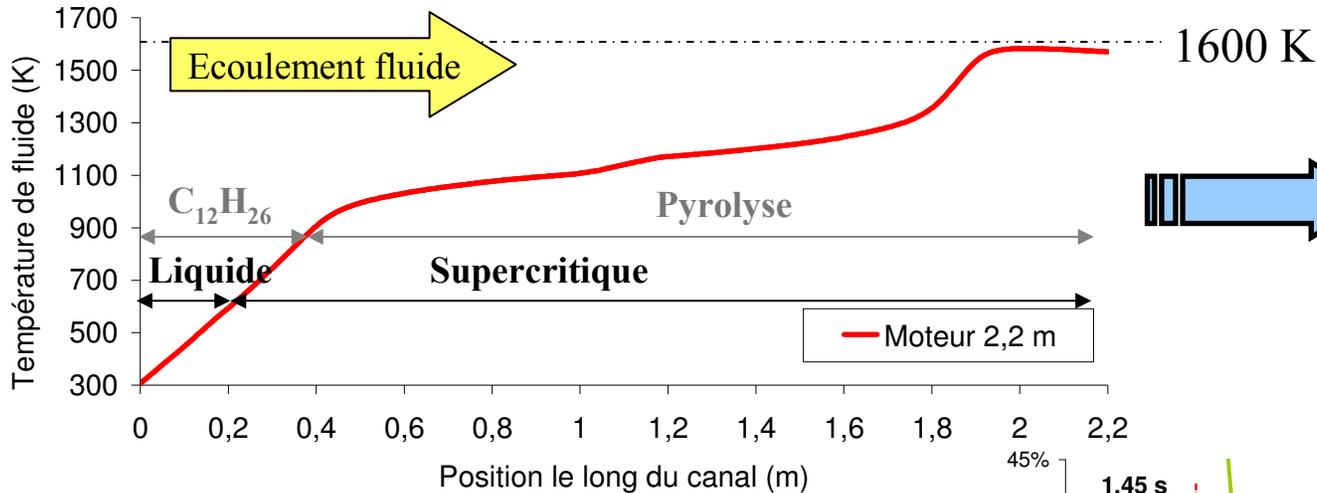
[2] Dahm K.D., Virk P.S., Bounaceur R., Battin-Leclerc F., Marquaire P.M., Fournet R., Daniau E., Bouchez M., (2004) "Experimental and modelling investigation of the thermal decomposition of n-dodecane", *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 71 (2004) 865-881.





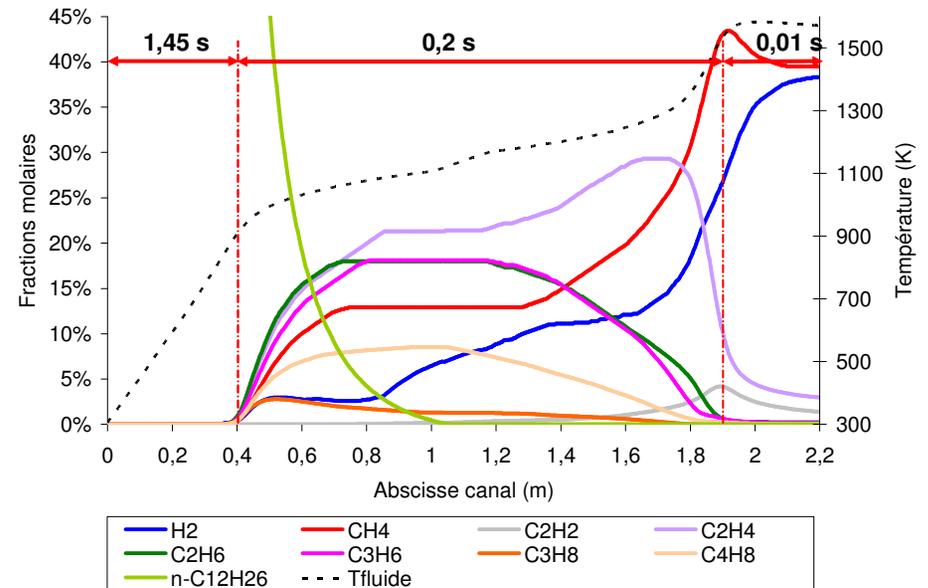


## Application de NANCYNETIK à un moteur type (Mach 6):



- Conditions d'essais pour le montage expérimental
- Prédimensionnement

- Température max. de face chaude : 1600 K
- Transition liquide/supercritique (35 bars)
- Phase liquide :  
10 % en espace  $\Leftrightarrow$  80 % en temps
- Temps de séjour  $\approx$  1,6 s
- Pyrolyse :  
100% sur 200 K  $\Leftrightarrow$   $H_2, CH_4 \dots C_2H_4$

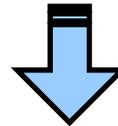


## D'un outil en régime stationnaire à une modélisation transitoire:

- Transport des espèces non considéré (0-D cascadié), code stationnaire
- Temps caractéristiques :
  - 10 s : transferts thermiques en paroi
  - 1 s : écoulement en canal
  - 1 ms : écoulement en chambre de combustion
- Couplage / Évolution  $\Rightarrow$  **Transitoire**

NANCYNETIK : **0-D** cascadié stationnaire

$$\dot{m} = \rho \cdot S \cdot V$$



$$\frac{\partial(\rho_f)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_f \cdot V_f)}{\partial x} = 0$$

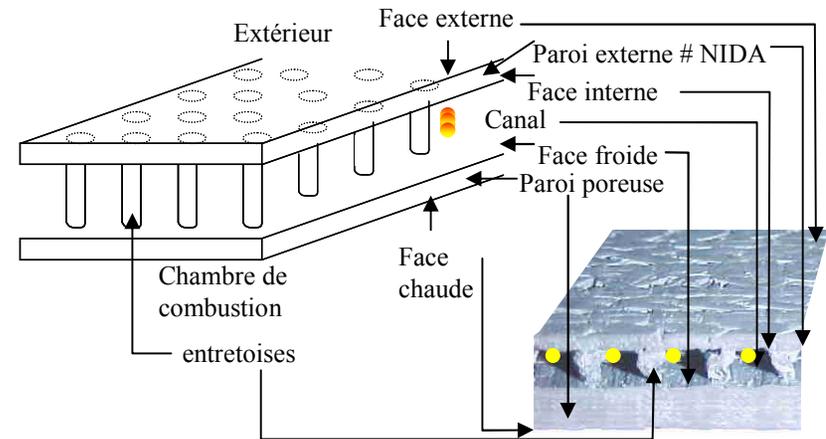
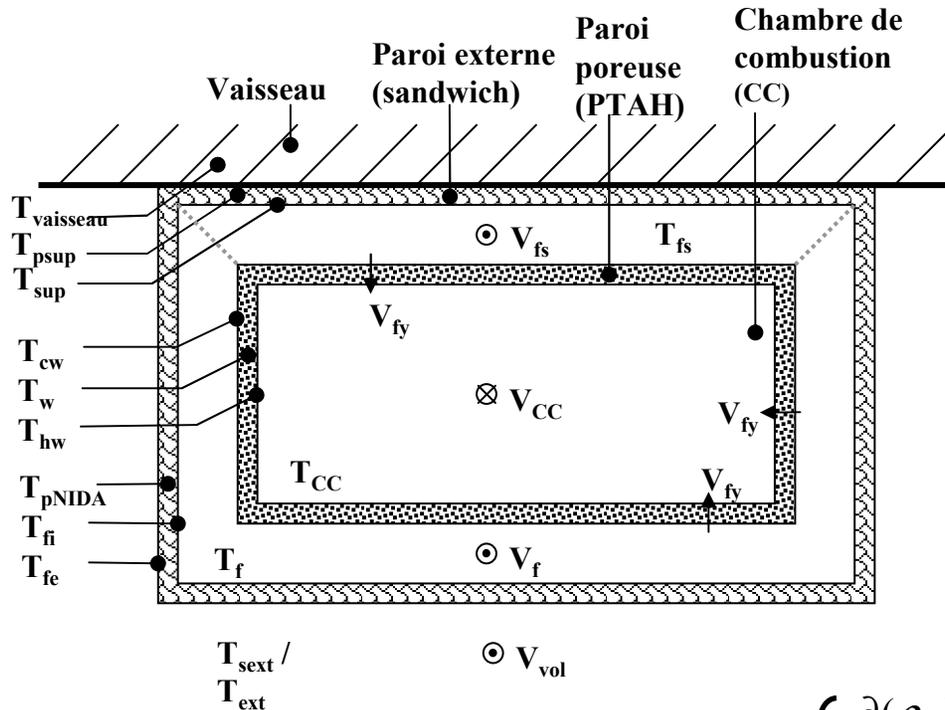
RESPIRE : **1-D** transitoire

### Création d'un nouvel outil

- Identification & évaluation des phénomènes physiques
- Équations + hypothèses associées
- Validation

**RESPIRE : Refroidissement par Endocarburant d'un Statoréacteur, Programmation Instationnaire d'un Réacteur**

## Modélisation transitoire: *FLUIDE*

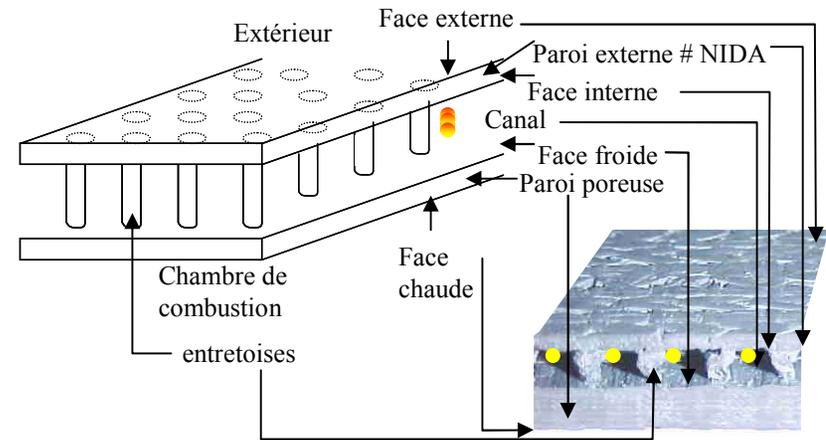
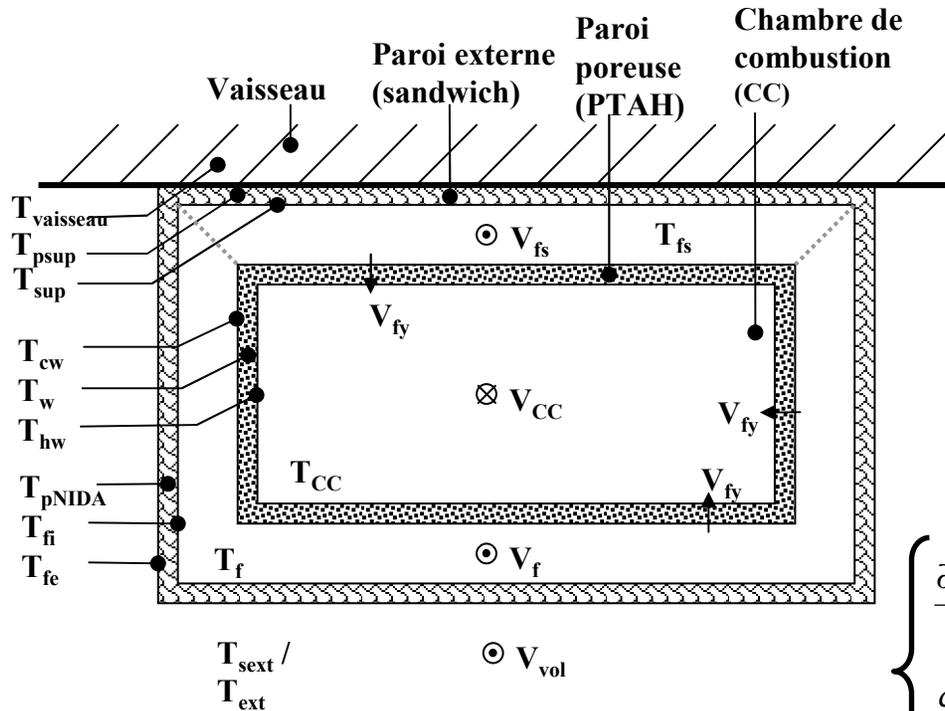


- Bilan de continuité de la masse
- Bilan de quantité de mouvement
- Bilan d'énergie

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(\rho_f)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_f.V_f)}{\partial x} = -\frac{1}{h_{can}} \rho_f.V_{fy} - coke_1 \\ coke_1 = \text{dépôt} \times S_{\text{dépôt}} \times Vol_{\text{contrôle}} \\ \approx 100 \mu\text{g.cm}^{-2}.\text{s}^{-1} \end{array} \right.$$

$$\dot{m}_w = \frac{\kappa \times \frac{\Delta P}{e_w} \times A_w}{\frac{\mu}{\rho}}$$

## Modélisation transitoire: *FLUIDE*



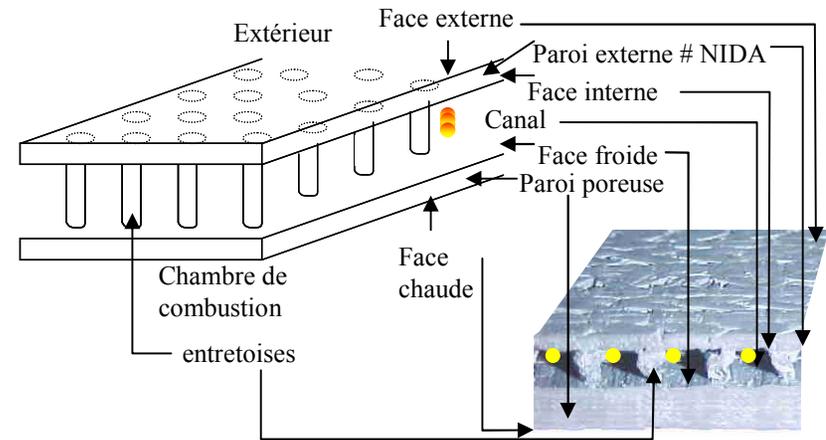
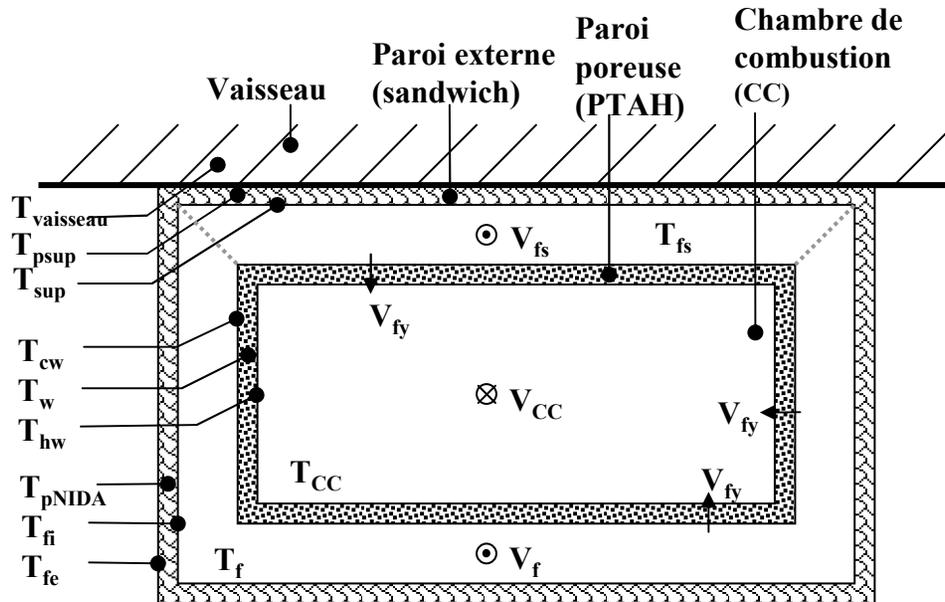
- Bilan de continuité de la masse
- **Bilan de quantité de mouvement**
- Bilan d'énergie

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(V_f)}{\partial t} = \frac{1}{\rho_f} \left( -\rho_f \cdot V_f \frac{\partial(V_f)}{\partial x} - \frac{1}{h_{can}} \rho_f \cdot V_{fy} (V_{fy} - V_f) - coke - \frac{\partial P_{sf}}{\partial x} + \frac{\partial \tau}{\partial x} \right) \\ coke = coke_2 - V_f \cdot coke_1 \\ coke_2 = \rho_{coke} \times \left( \frac{\text{dépôt}_{\text{tabulé}}}{\rho_{coke}} \right)^2 \times \frac{S_{\text{dépôt}}}{Vol_{\text{contrôle}}} \end{array} \right.$$

$$Nu = b \cdot Re^m \cdot Pr^n$$

$$Nu = B \cdot Ra^k$$

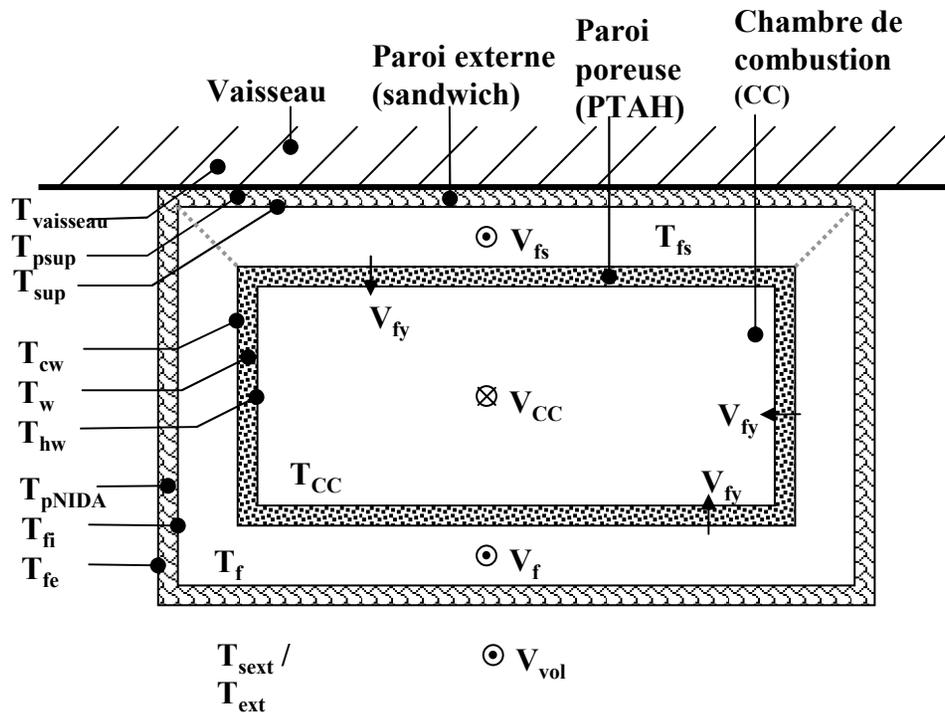
## Modélisation transitoire: *FLUIDE*



- Bilan de continuité de la masse
- Bilan de quantité de mouvement
- **Bilan d'énergie**

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial(\rho_f \cdot H_f)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_f \cdot V_f \cdot H_f)}{\partial x} &= \beta \cdot T_{s,f} \frac{\partial P_{s,f}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (-j_q + V_f \cdot \tau) \\ &+ \rho_f \cdot \sum_{\text{espèces}} h_{i,0} \cdot w_i - \frac{1}{h_{can}} \rho_f \cdot V_{fy} \left( c_p T_{sf} + \frac{V_{fy}^2}{2} \right) \\ &+ \frac{1}{h_{can}} h_{ff} (T_{ff} - T_f) + \frac{1}{h_{can}} h_{pi} (T_{pi} - T_f) \end{aligned} \right.$$

## Modélisation transitoire: *FLUIDE*



### • Bilan des espèces

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(\rho_f Y_i)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_f V_f Y_i)}{\partial x} = \rho_f w_i - \frac{1}{h_{can}} \rho_{fy} V_{fy} Y_i \\ w_i = \frac{1}{v_i} \times \frac{dC_i}{dt} \\ \frac{dC_i}{dt} = \sum_{j=1}^R v_{i,j} (r_j) \\ r_j = k \prod_{i\_esp\grave{e}ces} (C_i)^{\alpha_i} - k' \prod_{i\_esp\grave{e}ces} (C_i)^{\beta_i} \\ Y_{i,i+1}^{n+1} = (1-Q) Y_{i,i+1}^n + (Q) Y_{i,i}^n \\ Q = V_f / \left( \frac{\Delta x}{\Delta t} \right) \end{array} \right. \quad \text{+ mécanisme réactionnel [2]:}$$

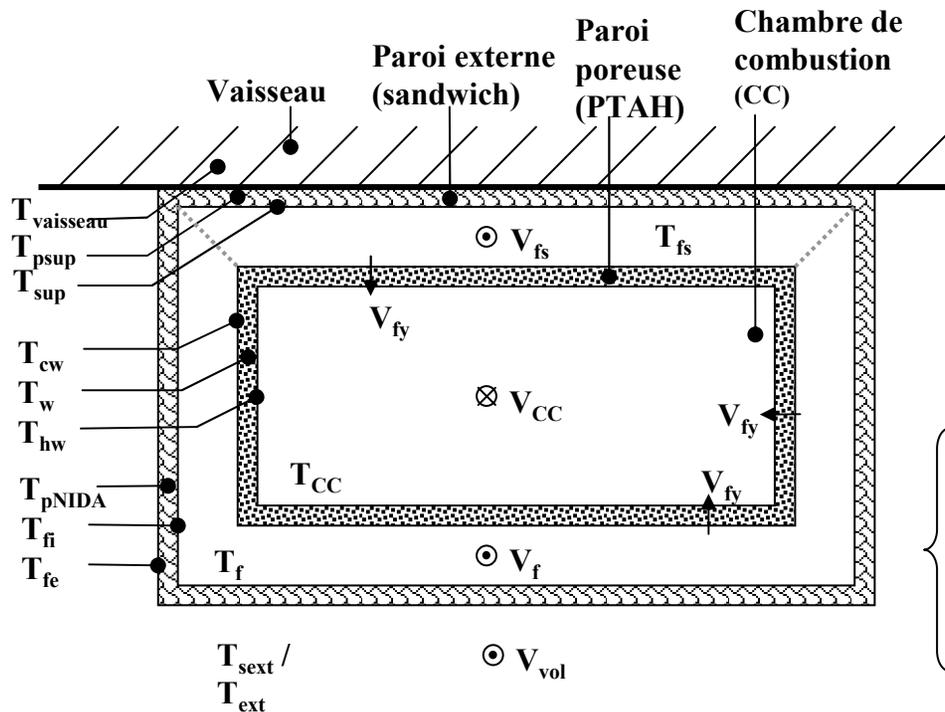
**1185 réactions, 153 espèces**

[2] Dahm K.D., Virk P.S., Bounaceur R., Battin-Leclerc F., Marquaire P.M., Fournet R., Daniau E., Bouchez M., (2004) "Experimental and modelling investigation of the thermal decomposition of n-dodecane", *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 71 (2004) 865-881.

### • Pression

$$\left\{ \begin{array}{l} \beta_c = \frac{\partial P}{\partial Vol} = \frac{\partial P}{\partial \rho} \\ c^2 = \frac{\partial P}{\partial \rho} \end{array} \right\} \quad \partial P = \beta_c \frac{\partial \rho}{\rho}$$

## Modélisation transitoire: *PAROIS*



$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{T}_{pNIDA} = \frac{T_{fi} + T_{fe}}{2} \\ \frac{\partial \bar{T}_{pNIDA}}{\partial t} = \frac{1}{\rho_{NIDA} \cdot Cp_{NIDA} \cdot \vartheta_{NIDA}} \left( \begin{array}{l} h_{ext} \cdot A_{ext} (T_{ext} - T_{fe}) \\ + \varepsilon \cdot \sigma \cdot A_{ext} \cdot F_{ext-pe} (T_{sext}^4 - T_{fe}^4) \\ - \lambda_{NIDA} \cdot A_{pe} \left( \frac{T_{fe} - T_{fi}}{e_{NIDA}} \right) \end{array} \right) \\ \lambda_{NIDA} \cdot A_{pe} \left( \frac{T_{fe} - T_{fi}}{e_{NIDA}} \right) = h_{pi} \cdot A_{pi} (T_{fi} - T_f) \end{array} \right.$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \bar{T}_{pNIDA}}{\partial t} = \frac{1}{\rho_{NIDA} \cdot Cp_{NIDA} \cdot V_{NIDA}} \left( \lambda_{NIDA} \cdot A_{pe} \left( \frac{T_{fe} - T_{fi}}{e_{NIDA}} \right) - h_{fi} \cdot A_{fi} (T_{fi} - T_f) \right) \\ \frac{\partial \bar{T}_{pp}}{\partial t} = \frac{1}{\rho_{pp} \cdot Cp_{pp} \cdot V_{pp}} \left( \lambda_{pp} \cdot A_{pp} \left( \frac{T_{fc} - T_{ff}}{e_{pp}} \right) - h_{ff} \cdot A_{ff} (T_{ff} - T_f) \right) \end{array} \right.$$

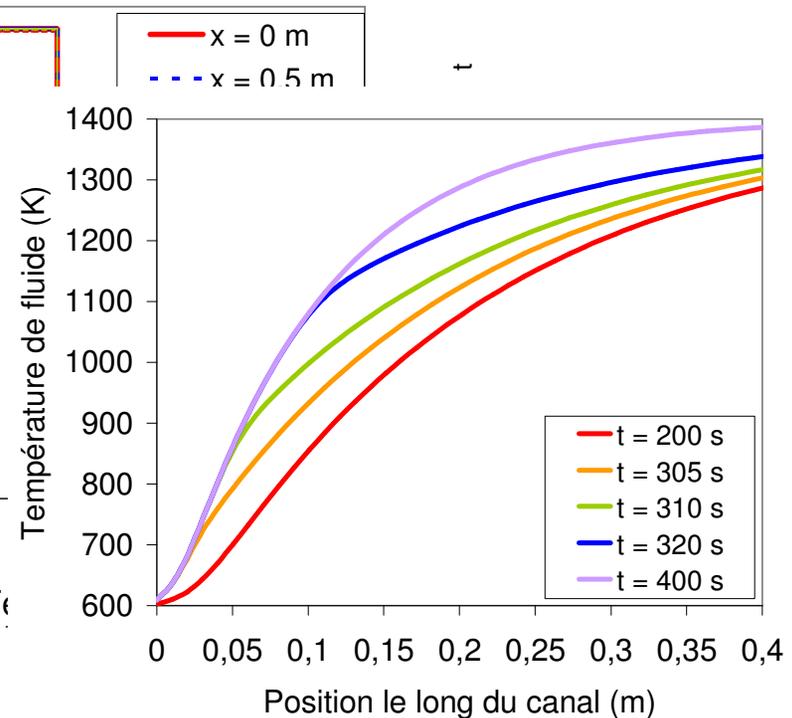
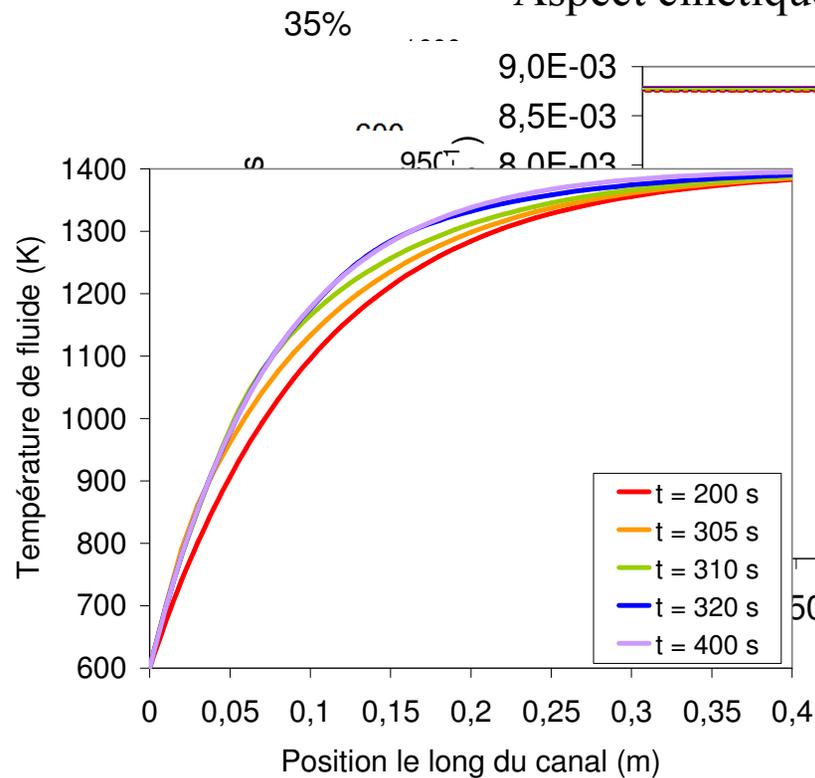
- **Chambre de combustion :**
  - bilan d'énergie
  - bilan de masse
  - bilan de quantité de mouvement

- **Divergent :**
  - bilan thermique
  - détente isentropique

- **Bilan aéropulsif :**
  - poussée en régime transitoire
  - vitesse de vol

## Premières validations :

- Etat stationnaire
- Régime transitoire
- Aspect thermique
- Aspect hydraulique-aéraulique
- Aspect cinétique chimique
- Validation analytique
- Validation numérique
- Validation expérimentale



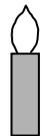
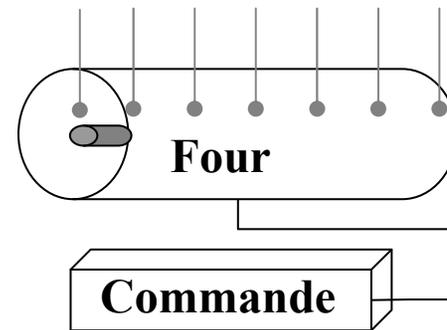
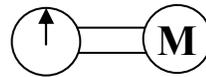
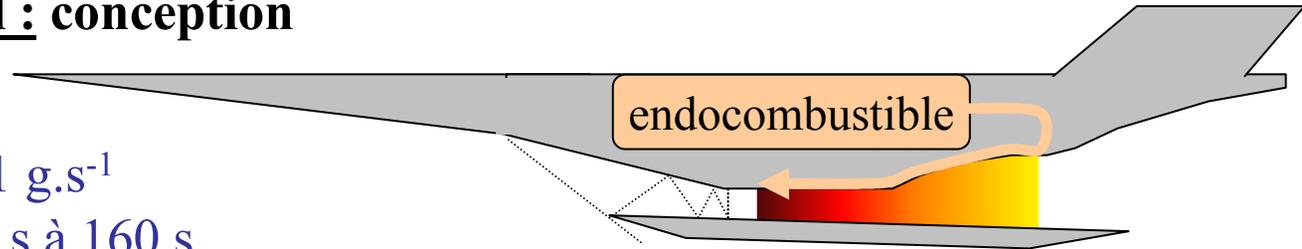


## Banc expérimental : conception

- Débit :  $0,05 \text{ g.s}^{-1} - 0,1 \text{ g.s}^{-1}$
- Temps de séjour : 20 s à 160 s
- Pression : 10-60 bars
- Température :  $350 \text{ }^\circ\text{C} - 850 \text{ }^\circ\text{C}$

- Débit max :  $0,6 \text{ g.s}^{-1}$
- Pression max : 80 bars
- Température max :  $1600 \text{ }^\circ\text{C}$

- Réservoir
  - Pompe
  - Four
  - Brûleur
- + réacteur chimique inox  
(3 mm & 4,5 mm)



**Canal de refroidissement = Canal de pyrolyse (réacteur chimique)**

## Banc expérimental : instrumentation

Phase gazeuse {

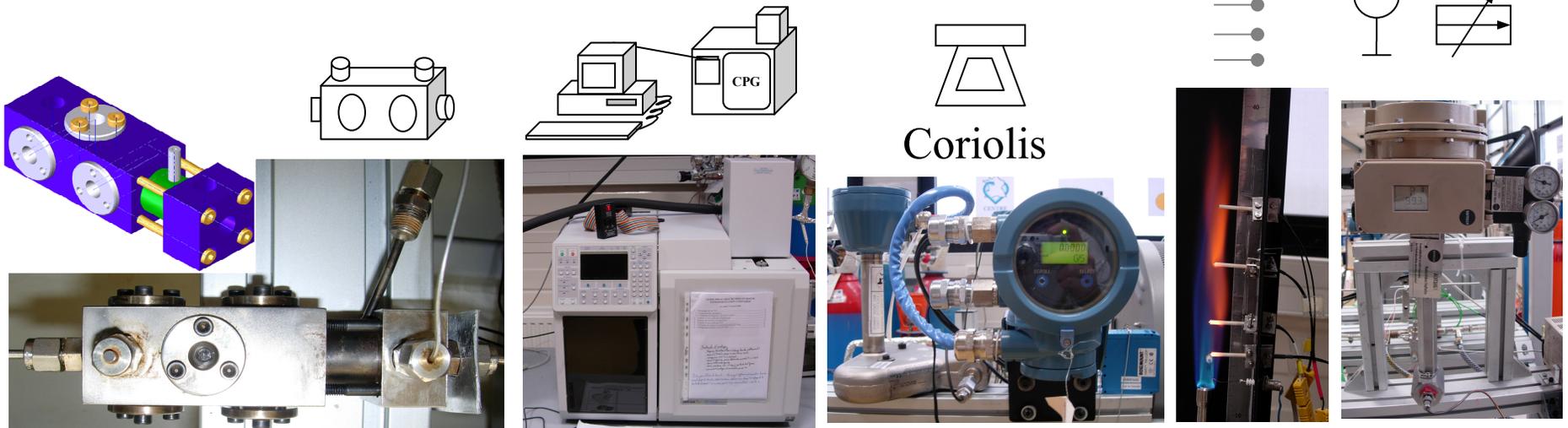
- Chromatographie en Phase Gazeuse
- $H_2$ ,  $CH_4$ ,  $C_2H_2$ ,  $C_2H_4$ ,  $C_2H_6$ ,  $C_3H_6$ ,  $C_3H_8$
- Analyse en ligne ou a posteriori

Phase liquide {

- Spectromètre de Masse + CPG
- $C_2$  et plus (u.m.a. > 350)
- Analyse a posteriori

- Composition chimique
- Température (> 20 mesures)
- Pression (8 mesures)
- Débit, masse volumique
- Imagerie (visuelle, IR)
- Centrale d'acquisition

Bloc mesure instrumenté + hublots  
(test de méthodes)





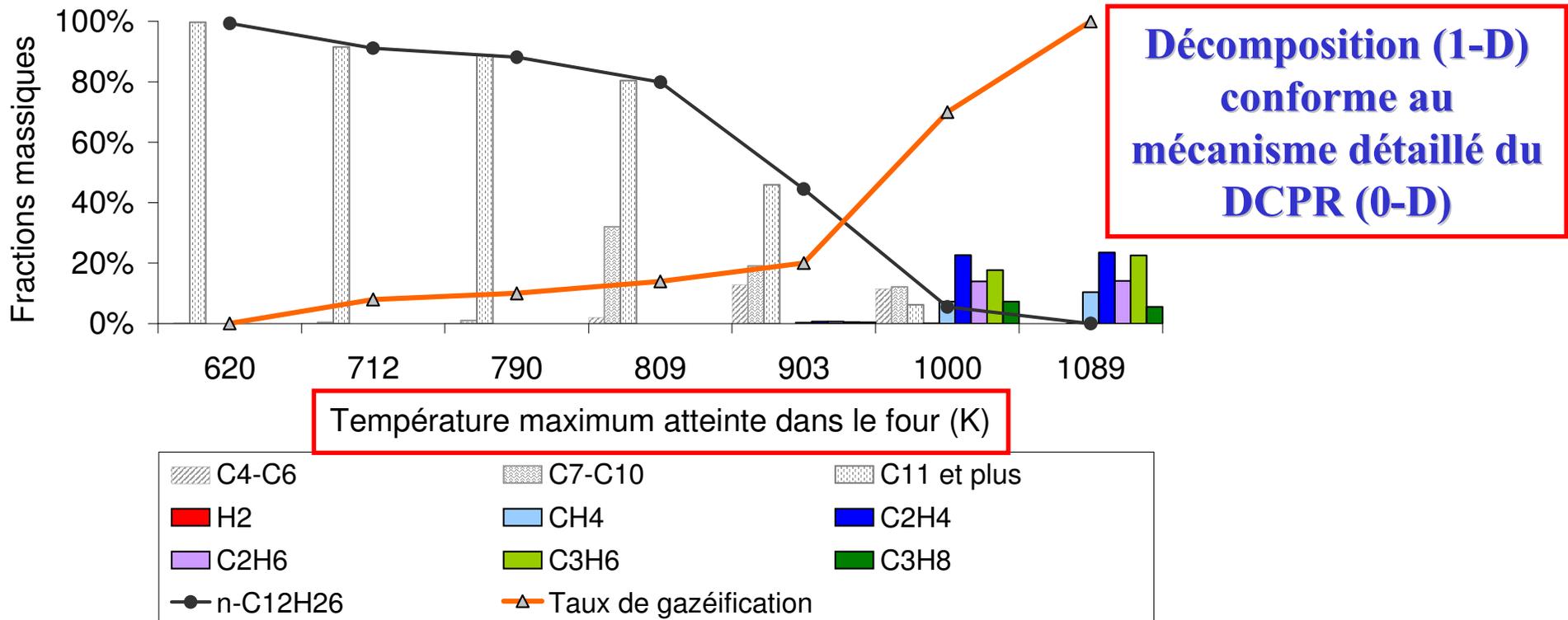
**Quelles mesures pour quelles exploitations :**

- |  |   |                               |
|--|---|-------------------------------|
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• Compositions chimiques liquide/gaz</li> <li>• Température, pression, débit</li> </ul> | } | Etude paramétrique            |
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• Conditions d'essais</li> </ul>  | } | Exploitation par le numérique |
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• Compositions chimiques liquide/gaz</li> <li>• Conditions d'essais</li> </ul>          | } | Validation du numérique       |
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• Compositions chimiques liquide/gaz</li> <li>• Débit</li> </ul>                        | } | Tests des méthodes de mesures |

## Pyrolyse à l'état stationnaire:

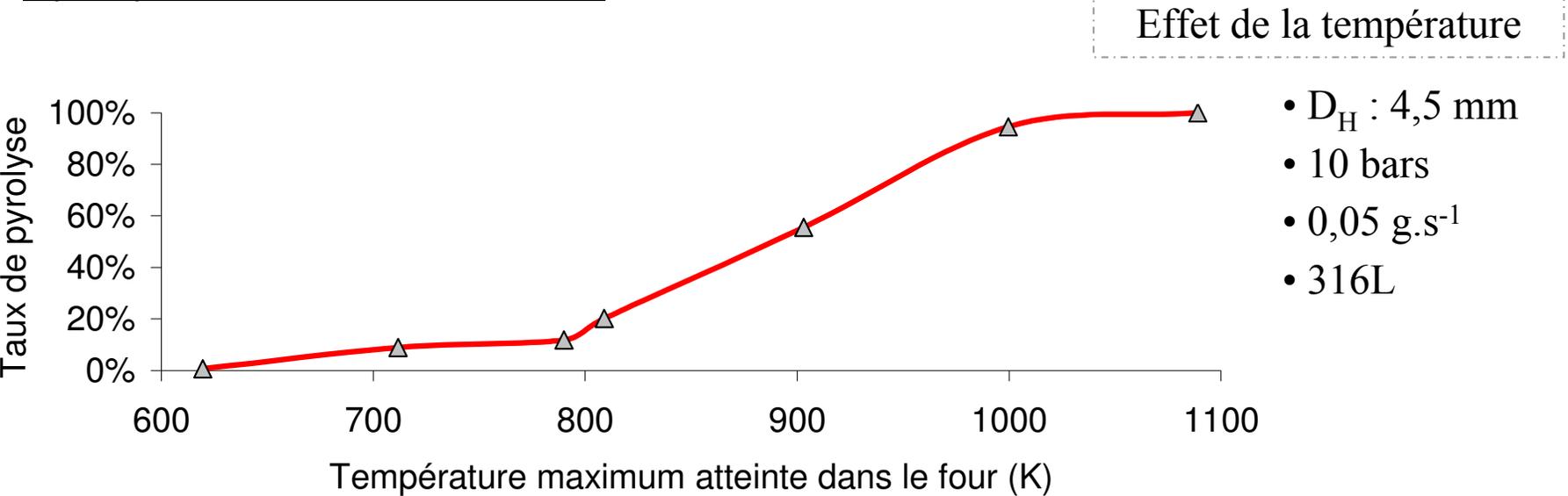
### Résultats des essais de décomposition

- Stabilité & Reproductibilité des points d'essais : vérifiées



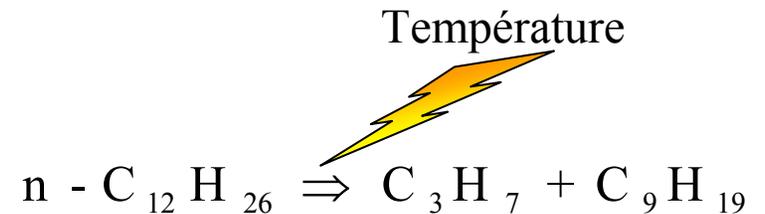


## Pyrolyse à l'état stationnaire:

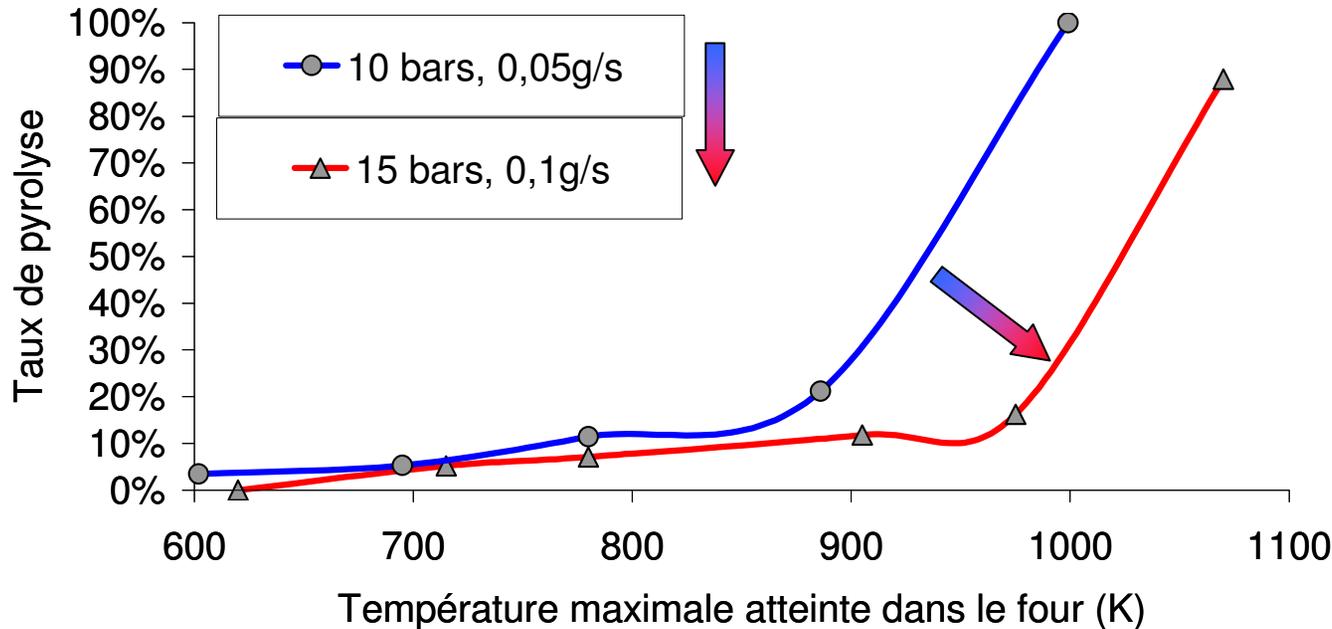


• Explication avancée :

L'augmentation de la température accroît la vitesse de réaction (**stabilité thermochimique** à haute température=>tend vers HSC)



## Pyrolyse à l'état stationnaire:

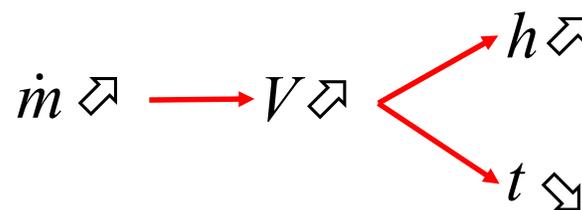


### Effet du débit

- $D_H : 3 \text{ mm}$
- 316L
- $0,05 \text{ g.s}^{-1} \Leftrightarrow 0,1 \text{ g.s}^{-1}$

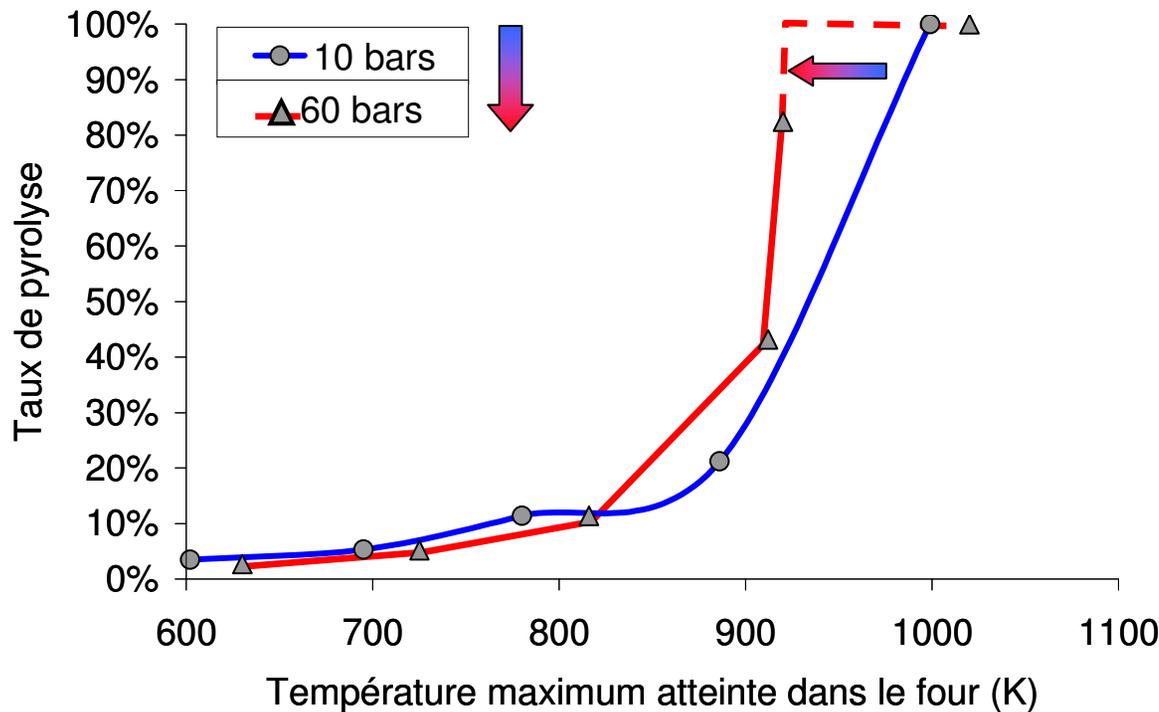
### • Explication avancée :

Diminution du temps de séjour



$$\begin{cases} \dot{m} = \rho \cdot S \cdot V \\ t = L_{\text{réacteur}} / \bar{V} \\ h = f(\text{Nu}) = f(\text{Re}, \text{Pr}) \\ = f(\rho, V, D_H) \end{cases}$$

## Pyrolyse à l'état stationnaire:



### Effet de la pression

- $D_H : 3 \text{ mm}$
- $0,05 \text{ g.s}^{-1}$
- 316L
- 10 bars  $\Leftrightarrow$  60 bars

$$\left\{ \begin{array}{l} P = \rho \cdot (Z \cdot r \cdot T) \\ \dot{m} = \rho \cdot S \cdot V \\ t = L_{\text{réacteur}} / \bar{V} \\ h = f(Nu) = f(Re, Pr) \\ = f(\rho, V, D_H) \end{array} \right.$$

• Etat subcritique :

Influence relative de la pression (< 20 bars)

• Etat supercritique :

Influence négligeable de la pression (> 20 bars)

$$P \varnothing \longrightarrow \rho \varnothing \longrightarrow V \varnothing \longrightarrow t \varnothing$$

## Pyrolyse à l'état stationnaire:

+ Section passage du réacteur et nature du matériau

	Pression	Débit	Section	Température
Masse volumique	↗	?	?	↘
Temps de séjour	↗	↘	↗	↘
Échange convectif	?	↗	↘	?
<b>Pyrolyse</b>	↗	↘	↗	↗

	Débit de fluide (g.s <sup>-1</sup> )	Température maximale de four (K)	Pression fluide (bars)
Paramètre	A	B	C
Niveau haut (+1)	0,1	1000	60
Niveau bas (-1)	0,05	800	10

Fonctionnement à T, P, t élevés

↓

Production espèces légères (combustion)

Facteurs			Interactions				Taux massique de pyrolyse
A	B	C	AB	AC	BC	ABC	
-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	11,4%
+1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	7,1%
-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1	100,0%
+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	16,2%
-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	11,4%
+1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	7,2%
-1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	100,0%
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	45,1%
<b>-0,184</b>	<b>0,280</b>	0,036	-0,163	0,036	0,036	0,036	0,373

## Vérification du bilan de matière:

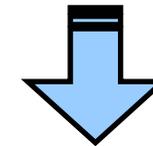
	Masse initiale (g)	Masse de gaz (g)	Masse de liquide (g)	Masse de coke (g)	Ecart au bilan (g)		Masse initiale (g)	Masse de gaz (g)	Masse de liquide (g)	Masse de coke (g)	Ecart au bilan (g)
<b>Température 809 K</b>						<b>Température 1090 K</b>					
Carbone	46,93	0	47	-	-0,07	Carbone	144,8	56,7	88,4	-	-0,3
Hydrogène	8,47	0	8,4	-	0,07	Hydrogène	26,2	12,4	13,5	-	0,3
Total	55,4	0	55,4	-	0	Total	171	69,1	101,9	-	0
Rapport H/C	0,181	-	0,179	-		Rapport H/C	0.181	0.219	0.153	-	

**Durée : 4000 s**

**Durée : 2500 s**

	Masse initiale (g)	Masse de gaz (g)	Masse de liquide (g)	Masse de coke (g)	Ecart au bilan (g)
<b>Totalité de l'essai</b>					
Carbone	479	95,4	385,5	1,9	-3,8
Hydrogène	86,5	20,3	61,3	0	4,9
Total	565,5	115,7	446,8	1,9	1,1
Rapport H/C	0,181	0,213	0,159	0	

**Bilan de matière : < 1%**  
Process maîtrisé



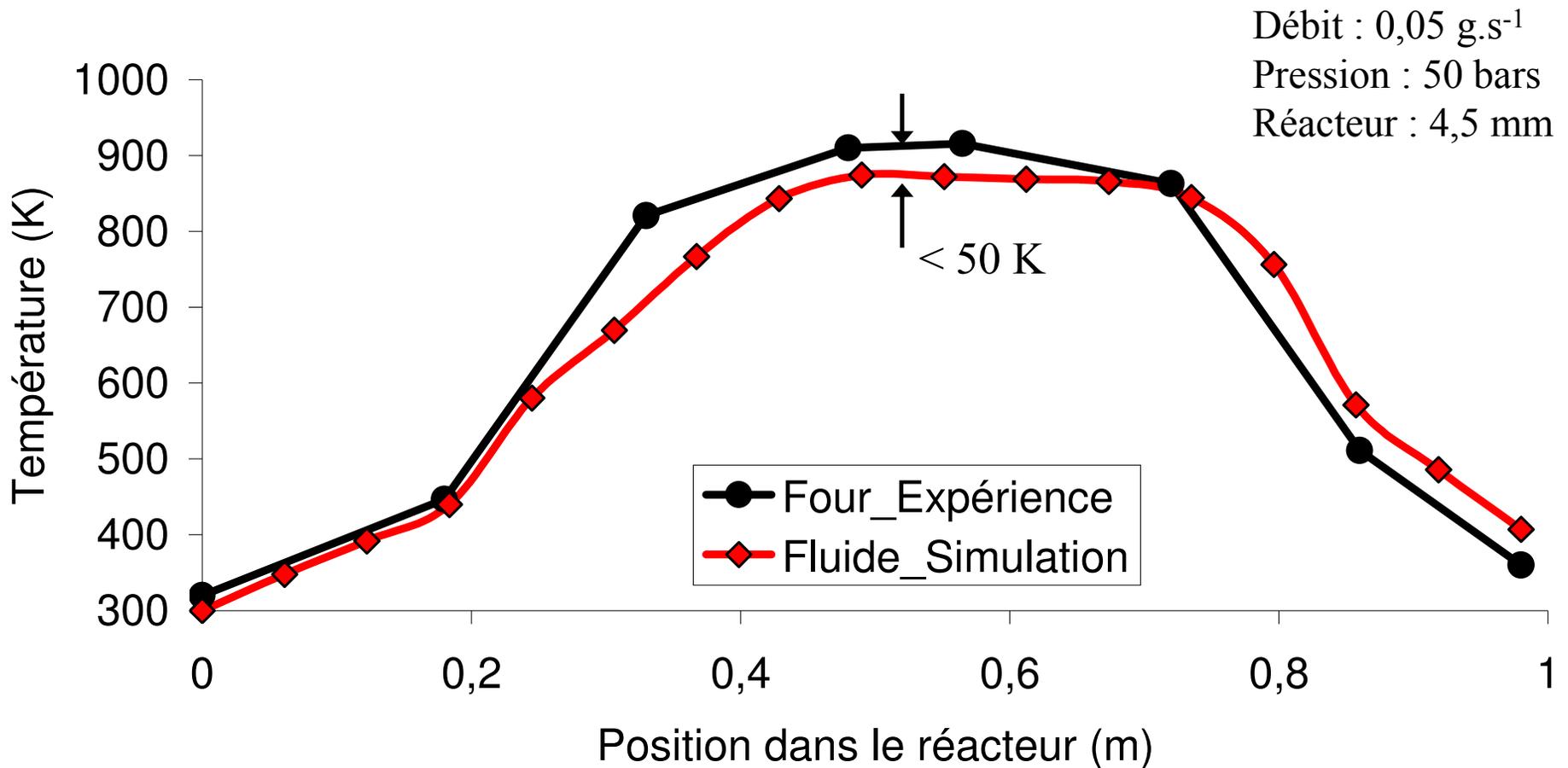
**Étude de l'effusion (10 % du débit)**

**Durée : 11650 s**

## Exploitation par la simulation :

(1/3)

Exploitation des résultats d'essais

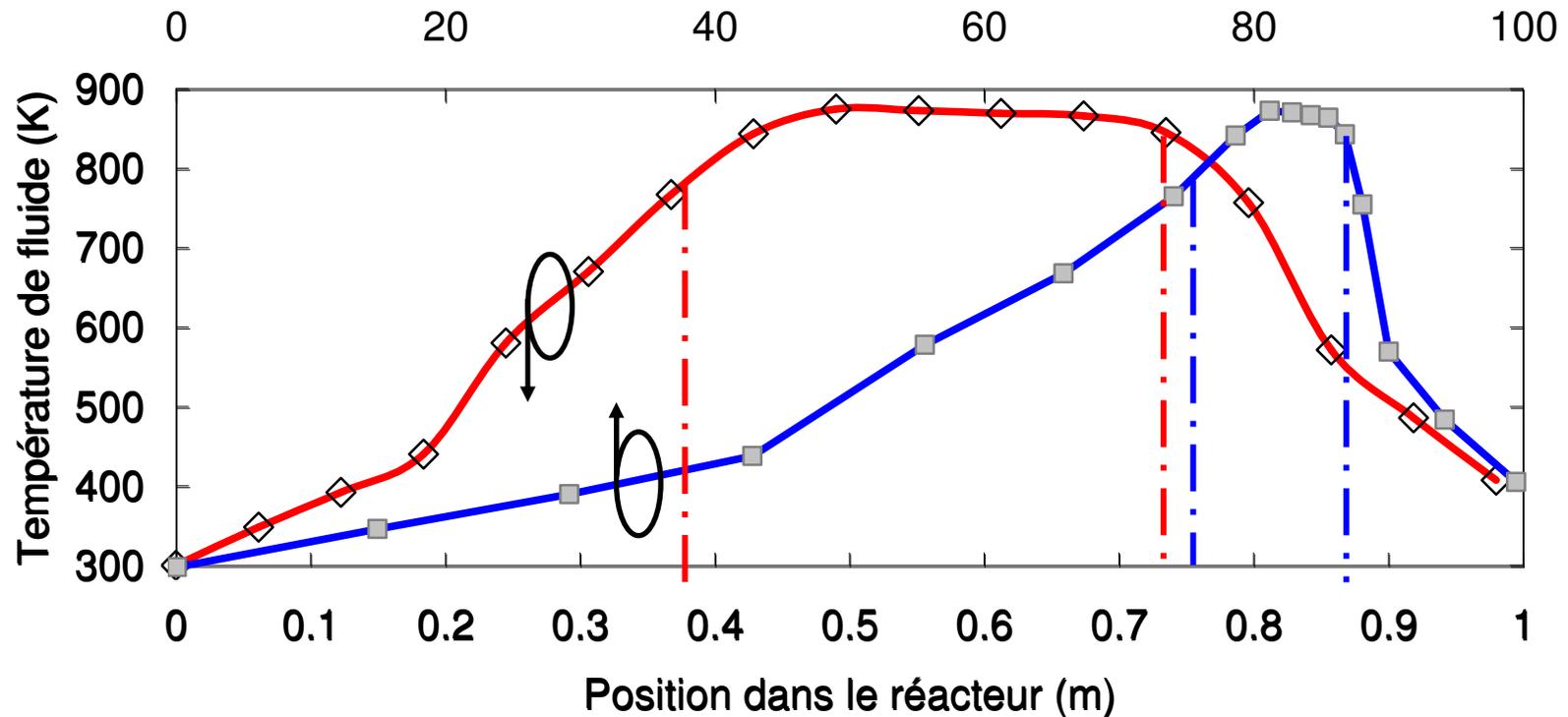




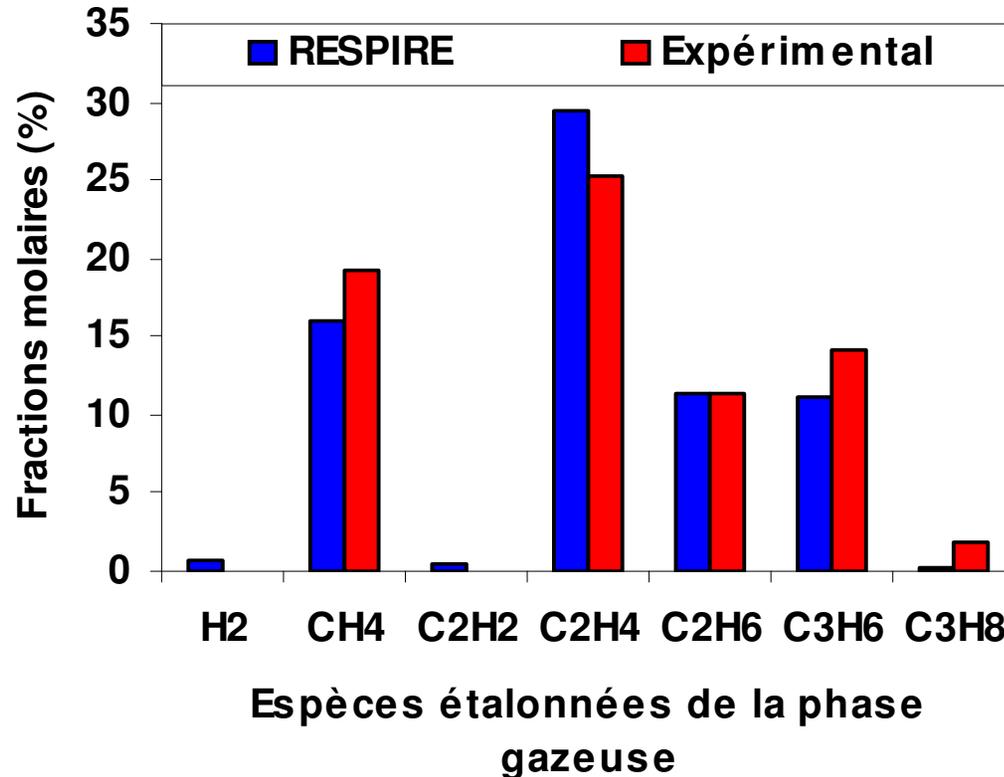
**Exploitation par la simulation :**  
**(3/3)**

Exploitation des résultats expérimentaux :  
RESPIRE, outil indispensable

- Temps de séjour global : 100 s
  - Temps de refroidissement : 15 s
  - Temps d'échauffement : 75 s
  - Temps efficace de pyrolyse : 10 s
- Temps de séjour cumulé depuis l'entrée (s)



## Confrontation expérience - modélisation :



Ecart acceptable

- $D_H : 4,5 \text{ mm}$
- $1100 \text{ K}$
- $10 \text{ bars}$
- $0,05 \text{ g.s}^{-1}$
- Taux de pyrolyse :  $100 \%$
- Taux de gazéification :  $100 \%$
- Taux de pyrolyse :  $100 \%$
- Taux de gazéification :  $100 \%$
- Fractions molaires gazeuses  
⇒ CPG
- Quelques pourcents d'écart en mole
- Mesure expérimentale de  $H_2$  difficile
- Incertitudes de mesure sur les températures ( $\pm 20 \text{ K} \Leftrightarrow \pm 10 \%$  de pyrolyse)

## Confrontation expérience - modélisation :

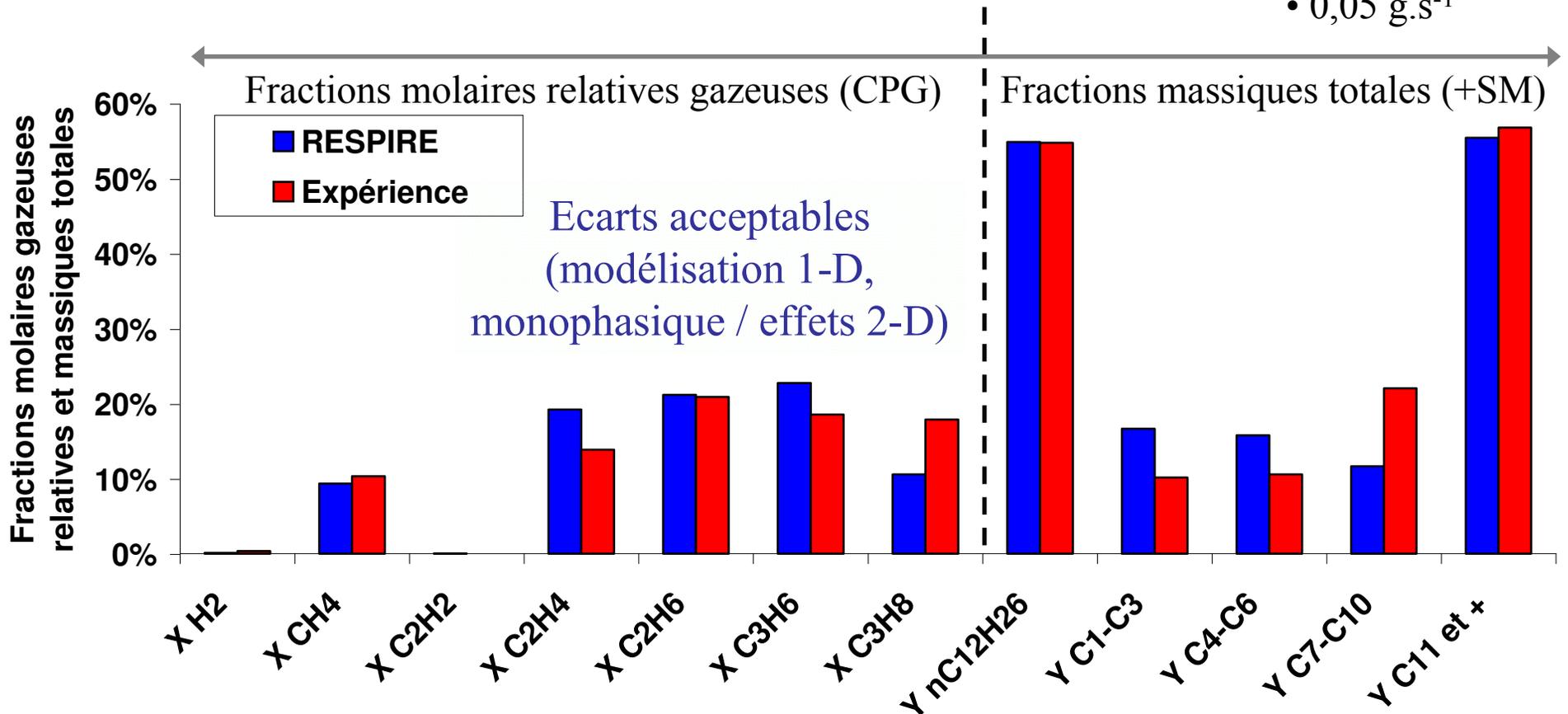
Taux de pyrolyse : 45 %

Taux de pyrolyse : 45 %

Taux de gazéification : 17 %

Taux de gazéification : 13 %

- $D_H$  : 4,5 mm
- 773 K
- 50 bars
- 0,05 g.s<sup>-1</sup>





## Confrontation expérience - modélisation :

**910K, 50 bars**  
**20 % de pyrolyse**  
 (Fractions massiques)

	HSC	Expérimentation	RESPIRE	SENKIN 0-D
Temps de séjour (s)	$\infty$	non mesuré	0 à 160	0,1
n-C12H26	0,0%	80,0%	85,0%	85,0%
H2	1,4%	0,0%	0,0%	0,1%
CH4	77,4%	0,4%	0,4%	0,7%
C2H4	0,0%	0,1%	1,0%	1,9%
C2H6	0,4%	0,5%	2,0%	1,9%
C3H6	0,0%	0,3%	1,6%	1,4%
C3H8	0,0%	0,3%	1,4%	1,1%

- Pas d'équilibre thermodynamique
- Importance du profil de chauffe (0-D limité)
- Intérêt de RESPIRE face à NANCYNETIK, inopérant dans ces conditions







## Conclusion de l'étude expérimentale :

### Retombées de l'étude

#### Modélisation 1-D transitoire

- véhicule hypersonique refroidi complet
- chimie détaillée (1185 réactions, 153 espèces)
- transport
- effusion

### Résultats de Recherche

- Dynamique d'un écoulement thermocinétique supercritique
- Complémentarité avec l'expérience
  - température de fluide
  - temps de séjour
- Polyvalence du code
  - écoulements lents/rapides tout fluide
  - géométries
  - sollicitations

### Vers le besoin industriel

- A terme :
  - transitoire
  - effusion selon espèce
  - méthodes de mesure
  - régulation système



## Bilan de thèse:

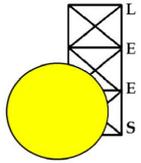
- Objectifs scientifiques : atteints en stationnaire (régime transitoire testé)
  - 1 Publication – Journal international
  - 4 Publications – Conférences Internationales+actes
  - 2 Publications – Conférences Nationales+actes
  - 2 Publications – Colloques locaux
- Applications industrielles : paramètres identifiés, méthodes de mesure à approfondir

*A terme :*

- Méthodes de mesure utilisables en pétrochimie, aéronautique, automobile,...



Introduction	Présentation de l'étude	Outils numériques	Banc expérimental	Résultats	Conclusions
● ● ● ● ● ●	● ● ●	● ● ● ● ● ● ● ●	● ● ● ●	● ● ● ● ● ● ● ●	● ● ● ● ●



## Mes remerciements



- Aux rapporteurs et aux membres du jury



- A l'équipe du projet COMPARER



- Aux partenaires



- A l'assistance

