

Réactivité effective de parois non-uniformes

Yvan ASPA^{1*}, Gérard VIGNOLES², Michel QUINTARD¹

¹Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, UMR 5502 : CNRS-INPT-UPS,
Allée du Pr C. Soula, 31400 Toulouse, France

²Laboratoire des Composites ThermoStructuraux, UMR 5801 : CNRS-SAFRAN-CEA-UB1,
Domaine Universitaire de Bordeaux – 3, Allée de La Boétie, 33600 Pessac, France

*(auteur correspondant : yvan.aspa@imft.fr)

Résumé - Le but de l'étude est de calculer la réactivité effective k_{eff} de parois réactives non-uniformes telle que :

$$-D\vec{\nabla}\langle c \rangle \cdot \vec{n}_{\gamma\kappa} = k_{eff}\langle c \rangle$$

Dans le cas où la surface est lisse et non-récessive, le problème est résolu par la méthode de prise de moyenne. L'étude exposée ici constitue une extension des travaux de [1] au cas où le transport est diffusif et convectif.

Nomenclature

\vec{b}	Variable de fermeture d'ordre 1, m	s	Variable de fermeture d'ordre 0
c	Concentration en réactif, $mol.m^{-3}$	Sc	Nombre de Schmidt
\tilde{c}	Déviations de la concentration, $mol.m^{-3}$	\vec{u}	Vitesse du fluide, $m.s^{-1}$
D	Coefficient de diffusion, $m^2.s^{-1}$	\vec{v}	Vitesse de la paroi, $m.s^{-1}$
Da	Nombre de Damköhler		
k	Constante de réaction hétérogène, $m.s^{-1}$		<i>Symboles grecs</i>
k_{eff}	Constante de réaction effective, $m.s^{-1}$	Ω	Domaine fluide, m^3
l	Échelle des hétérogénéités de la paroi, m	Σ	Surface réactive non-uniforme, m^2
L	Échelle de l'écoulement, m	Σ_{eff}	Surface réactive effective, m^2
$\vec{n}_{\gamma\kappa}$	Normale à la paroi, m	Υ	Volume molaire du solide, $m^3.mol^{-1}$
Re_{CL}	Nombre de Reynolds global		<i>Autres</i>
Re_x	Nombre de Reynolds local	$\langle * \rangle$	Opérateur de prise de moyenne

1. Introduction

L'application des approches de changement d'échelle pour la construction de surfaces effectives est une application récente relativement à l'application volumique de ces méthodes. L'un de ces outils est la prise de moyenne volumique. Cette méthode a permis la construction de condition d'interface entre un milieu poreux et un milieu libre pour des transferts de quantité de mouvement [2], de chaleur [3] et récemment de masse dans un cas réactif [4]. La prise de moyenne a aussi été appliquée avec succès au cas de surfaces catalytiques non-uniformes [1].

L'étude présentée ici prend place dans ce contexte théorique et se propose de construire une paroi effective dans le cas d'une paroi non-uniforme siège d'une réaction hétérogène entre le solide et le fluide qui le surmonte comme illustré sur la figure 1. Dans cette étude, l'échelle de l'écoulement L est grande devant celle de l'hétérogénéité de la paroi l : $L \gg l$. On recherche alors la réactivité effective k_{eff} d'une paroi lisse homogène qui, placée dans les mêmes conditions, conserve le comportement moyen de la paroi détaillée. Ce passage est illustré par la figure 2.

L'application qui motive plus particulièrement cette étude est l'ablation des composites C/C à l'échelle microscopique. L'ablation est une perte de masse due à la gazéification du matériau

sous la forme d'oxydation ou de sublimation. Ce phénomène se produit dans des applications différentes : réacteur à fusion nucléaire [5], col de tuyères pour la propulsion solide [6], corps de rentrée atmosphérique [7]. La phénoménologie de l'ablation à l'échelle des fibres de carbone qui constituent les renforts du matériau est cependant très proche d'une application à l'autre comme illustré dans [8]. On se propose donc de les étudier à travers un modèle unique où la surface réactive sera plongée dans une couche limite laminaire incompressible. Ce travail est une contribution à la compréhension et à la quantification de l'impact du couplage transport de masse-réaction sur le comportement effectif des surfaces réactives.

2. Modèles de surfaces réactives étudiés

En suivant les considérations phénoménologiques développées dans [7], les systèmes considérés dans cette étude sont isothermes et isobares. L'écoulement qui surmonte la paroi réactive Σ est laminaire et incompressible. La conservation de la quantité de mouvement dans le domaine fluide Ω obéit alors à :

$$\partial_t \vec{u} + (\vec{u} \cdot \nabla) \vec{u} - \nu \Delta \vec{u} = 0 \text{ sur } \Omega \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0 \text{ sur } \Omega \quad (2)$$

Dans les applications mentionnées plus haut, les réactifs sont suffisamment dilués qu'on puisse faire l'hypothèse que le champ de concentration $c(\vec{x})$ n'influe pas sur les propriétés mécaniques du fluide. Le problème de transfert de quantité de mouvement est alors découplé du transfert du réactif. La conservation du réactif dans le domaine fluide s'écrit alors :

$$\partial_t c - D \Delta c + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} c = 0 \text{ sur } \Omega \quad (3)$$

Par ailleurs, en nous appuyant sur les données de la littérature pour l'ablation des composites C/C, on écrit le taux de réaction hétérogène sur Σ sous la forme $R_\Sigma = -k c$. La condition à la paroi pour le réactif est alors :

$$\vec{n}_{\gamma\kappa} \cdot (c(\vec{u} - \vec{v}) - D \vec{\nabla} c) - k c = 0 \text{ sur } \Sigma \quad (4)$$

où \vec{v} est la vitesse de la paroi consommée. Dans les cas étudiés, le solide réagit mole à mole avec le réactif de concentration c . La vitesse de recul de la paroi ablatée est alors liée au taux de réaction par :

$$\vec{v} - (\Upsilon k c) \vec{n}_{\gamma\kappa} = 0 \text{ sur } \Sigma \quad (5)$$

où Υ est le volume molaire du solide. Dans les cas où le fluide est un gaz (cas des applications nommées plus haut), le solide est toujours beaucoup plus concentré que le réactif gazeux. La récession quantifiée par \vec{v} est alors très lente devant le transport. Le champ de concentration est alors stationnaire par rapport à la récession.

L'étude couplée de l'écoulement et de la récession fait intervenir un grand nombre de paramètres qui compliquent la résolution mais aussi la compréhension du comportement apparent. Pour appréhender plus facilement l'influence des différents paramètres, le modèle est séparé en deux sous-modèles : 1-Surface non-récessive ($\vec{v} = 0$) avec écoulement, 2-Surface récessive sans écoulement ($\vec{u} = 0$). On présente ici la démarche d'homogénéisation et les résultats obtenus dans le premier cas pour une surface lisse.

3. Surfaces non-récessives lisses

On considère une surface hétérogène non-récessive ($\vec{v} = 0$) lisse. Cette étude décrit notamment le cas où la réaction est de type catalytique. La surface est alors le siège d'une réaction qui ne conduit pas à une consommation du solide. On se propose alors d'étendre les résultats obtenus par *Wood et al.* [1] dans le cas purement diffusif au cas diffusion-convection. Dans notre étude, il n'y a pas d'effet du champ de concentration sur l'écoulement. La surface effective étant lisse comme la surface initiale, l'écoulement "effectif" est identique à l'écoulement détaillé et ne pose pas de problème d'homogénéisation.

3.1. Construction de la réactivité effective

Les équations-bilans écrites plus hauts décrivent le phénomène à l'échelle l des hétérogénéités du solide. Pour obtenir le problème vérifié par la concentration à l'échelle L , on introduit l'opérateur de prise de moyenne $\langle * \rangle$. En appliquant cet opérateur moyen aux bilans précédents, on obtient le problème vérifié par la concentration moyenne $\langle c \rangle$ à l'échelle de L . On introduit alors la déviation \tilde{c} du champ de concentration définie par :

$$c = \langle c \rangle + \tilde{c} \quad (6)$$

En retranchant la condition limite pour la concentration moyenne :

$$-\vec{n}_{\gamma\kappa} \cdot D\vec{\nabla} \langle c \rangle = \langle kc \rangle \quad (7)$$

à l'équation 4, on obtient la condition limite pour la déviation :

$$-\vec{n}_{\gamma\kappa} \cdot D\vec{\nabla} \tilde{c} = (k - \langle k \rangle) \langle c \rangle + k\tilde{c} - \langle k\tilde{c} \rangle \quad (8)$$

En supposant de plus que la concentration c est pseudo-périodique à l'échelle de l , on obtient le problème de la déviation \tilde{c} qui s'écrit :

$$\vec{u} \cdot \vec{\nabla} \tilde{c} = \nabla \cdot D\vec{\nabla} \tilde{c} \text{ sur } \Omega \quad (9)$$

$$-\vec{n}_{\gamma\kappa} \cdot D\vec{\nabla} \tilde{c} = \tilde{k} \langle c \rangle + k\tilde{c} - \langle \tilde{k}\tilde{c} \rangle \text{ sur } \Sigma \quad (10)$$

$$\tilde{c}(y = h) = 0 \quad (11)$$

$$\tilde{c}(x = x_0) = \tilde{c}(x = x_0 + l) \quad (12)$$

Les opérateurs intervenant dans notre système sont linéaires par rapport aux variables de concentration. A la suite de [1, 4], la fermeture est obtenue par l'introduction des variables $s(\vec{x})$ et $\vec{b}(\vec{x})$ telles que, en se limitant à l'ordre 1, on ait :

$$\tilde{c} = s \langle c \rangle + \vec{b} \cdot \vec{\nabla} \langle c \rangle \quad (13)$$

On obtient ensuite deux problèmes découplés pour chacune des variables de fermeture. Ces problèmes ne sont pas résolus sur l'ensemble de la paroi réactive mais uniquement sur une cellule $2D$ représentant un motif périodisé de la paroi hétérogène. Le problème sur \vec{b} donne directement $\vec{b} = 0$. Les effets d'ordre 1 sont donc nuls. Pour s , il n'y a pas de solution triviale et le problème suivant doit être résolu numériquement :

$$\vec{u} \cdot \vec{\nabla} s = \nabla \cdot D\vec{\nabla} s \text{ sur } \Omega \quad (14)$$

$$-D\vec{\nabla} s \cdot \vec{n}_{\gamma\kappa} = \tilde{k} + ks - \langle \tilde{k}s \rangle \text{ sur } \Sigma \quad (15)$$

$$s(y = h) = 0 \quad (16)$$

$$s(x = x_0) = s(x = x_0 + l) \quad (17)$$

$$\int_{\Omega} s \, dV = 0 \quad (18)$$

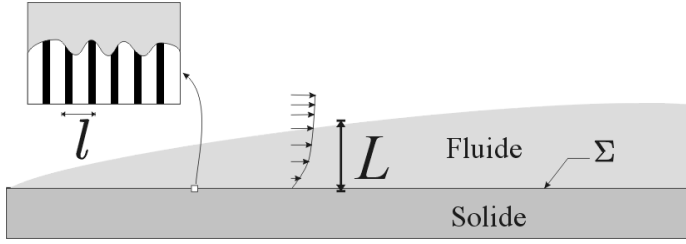


Figure 1 : Surface réactive hétérogène rugueuse.

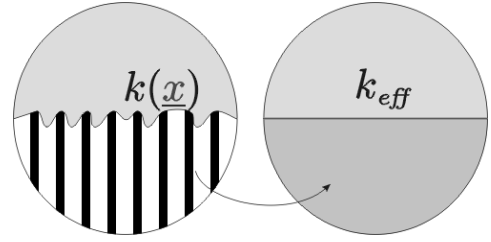


Figure 2 : Surface rugueuse détaillée et surface effective.

Par ailleurs, en injectant la fermeture dans l'équation 7, on obtient :

$$-D\vec{\nabla} \langle c \rangle \cdot \vec{n}_{\gamma\kappa} = \langle k(1+s) \rangle \langle c \rangle = k_{eff} \langle c \rangle \quad (19)$$

On en déduit :

$$k_{eff} = \langle k(1+s) \rangle = \langle k \rangle + \langle k s \rangle = \langle k \rangle + \langle \tilde{k} s \rangle \quad (20)$$

On obtient une condition à la limite sur la paroi effective de la même forme que la condition à la limite de petite échelle donnée par l'équation 4. La réactivité effective ainsi définie k_{eff} est la somme de la moyenne de la réactivité et de la contribution moyenne $\langle \tilde{k} s \rangle$ des hétérogénéités.

3.2. Résultats

Sous les hypothèses de travail exposées plus haut, l'écoulement représente une couche limite laminaire incompressible. Le champ de vitesse est alors simplement calculé à partir de la solution de Blasius pour la couche limite au-dessus d'une plaque mince [9]. Dans les résultats présentés ici, la réactivité de la paroi $k(\vec{x})$ est une fonction échelon symétrique de période l et d'amplitude $\tilde{K} = \frac{k_{max}}{k_{min}}$. Le problème intrégré-différentiel sur s est résolu par MEF grâce au logiciel commercial Comsol.

Pour souligner l'influence des différents couplages, les simulations sont paramétrées par les nombres de Schmidt $Sc = \frac{\nu}{D}$, $Re_x = \frac{Ux}{\nu}$ et Damköhler $\langle Da \rangle = \frac{\langle k \rangle l}{D}$.¹

Les résultats obtenus en terme de réactivités effectives sont exposés figure 3 et 4. Sur ces deux graphes, la réactivité effective k_{eff} est adimensionnée par la moyenne arithmétique des réactivités $\langle k \rangle$. Lorsque le nombre de Damköhler est petit devant l'unité, les gradients de concentration sont faibles et le champ $c(\vec{x})$ devient uniforme. On a alors $c = \langle c \rangle$ ce qui implique $s = \frac{\tilde{c}}{\langle c \rangle} = 0$. L'équation 20 donne alors $k_{eff} = \langle k \rangle$. Ce comportement asymptotique est indépendant de la structure de l'écoulement caractérisée par le nombre de Reynolds Re_x . De même, la figure 3 montre que pour $Da \gg 1$, la limite de la réactivité effective ne dépend pas de Re_x . Il est possible, par l'utilisation d'un modèle proche de celui développé dans [7], de montrer que cette limite est égale à la moyenne harmonique des réactivités :

$$\lim_{Da \rightarrow \infty} k_{eff} = \left(\frac{1}{\langle \Sigma \int_{\Sigma} \frac{dS}{k} \rangle} \right)^{-1} \quad (21)$$

Cette limite n'apparaît pas clairement dans les travaux de [1] car ceux-ci se limitent à des contrastes \tilde{K} infinis (le minimum de réactivité est nul).

¹Il est bon de noter que Da et Re_x sont définis par rapport à la petite échelle l et non par rapport à celle de l'écoulement L . Ainsi, le nombre de Reynolds relatif à la couche limite Re_{CL} sera de l'ordre de $Re_{CL} = O\left(\left(\frac{L}{l}\right)^2 Re_x\right)$

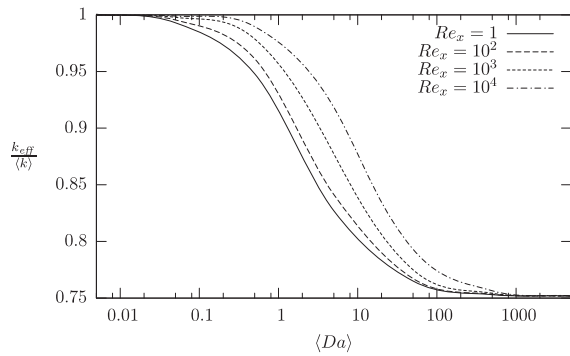


Figure 3 : Réactivité effective obtenue pour $Sc = 1$ et $\tilde{K} = 3$ en fonction du nombre de Damköhler pour différents nombre de Reynolds local.

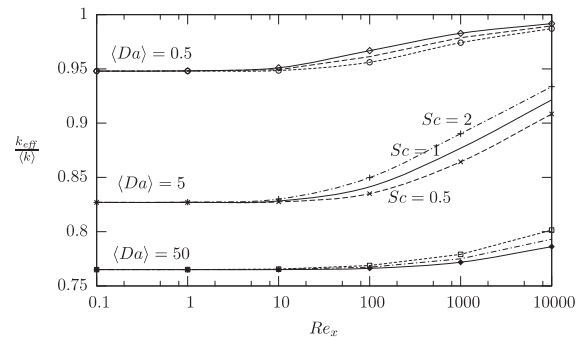


Figure 4 : Réactivité effective obtenue pour $\tilde{K} = 3$ en fonction du nombre de Reynolds local pour différents nombres de Schmidt et de Damköhler.

L'impact du nombre de Schmidt sur la réactivité effective est donné par la figure 4. On observe que plus le nombre de Schmidt augmente plus la réactivité effective augmente. Par ailleurs, ce graphe confirme le faible impact de l'écoulement sur la réactivité effective. Pour avoir une influence significative de l'écoulement sur k_{eff} , il faut avoir : 1-un nombre de Damköhler modéré ($0.5 < \langle Da \rangle < 50$) et 2- Un nombre de Reynolds local important ($Re_x > 100$).

4. Conclusion

Durant cette étude, le cas où la surface est considérée comme non-récessive, une extension des travaux de [1] a été formulée pour le cas lisse. Il a alors été montré que la réactivité k_{eff} de la paroi effective possède deux limites indépendantes de l'écoulement pour $Da \ll 1$ et $Da \gg 1$. La réactivité passe alors de la moyenne arithmétique à la moyenne harmonique des réactivités. De plus, cette étude a permis de montrer que dans le cas lisse, les paramètres descriptifs de l'écoulement Sc et Re_x influent notablement sur k_{eff} uniquement sous la double condition $Re_x > 100$ et $Da = O(10)$. L'extension de ces travaux au cas d'une surface rugueuse n'est pas direct. En effet, dans le cas rugueux, l'écoulement sur Σ et Σ_{eff} sont différents. Il faut donc procéder à l'homogénéisation du champs de vitesse. Une approche basée sur les travaux de [10] est en cours de développement. Dans le cas où la surface est récessive, la rugosité et la réactivité du milieu sont liés et ce couplage amène à un comportement effectif sensiblement différent du cas récessif. Le lecteur trouvera les différents modèles de complexité croissante ainsi que les résultats obtenus dans [11] pour le cas sans écoulement ($u = 0$). Les outils et modèles constitués pour l'étude de ces surfaces, ont permis l'identification par des approches inverses des réactivités microscopiques des composites à partir du comportement effectif du matériau et de sa rugosité après ablation [12]. Le mémoire [11] présente de plus les applications de ces avancées théoriques aux problématiques industrielles de l'ablation des composites C/C utilisés dans les cols de tuyères pour la propulsion solide. Dans les cas traités ici, la réaction hétérogène était d'ordre un. L'extension de ces approches à des milieux où les réactions prennent des formes complexes (réactions biochimiques par exemple) constitue l'une des perspectives de développement de ces approches.

Références

- [1] B. Wood, M. Quintard et S. Whitaker, Jump conditions at non-uniform boundaries : The catalytic surface, *Chemical Engineering Science*, 55, (2000), 5231–5245.
- [2] J.A. Ochoa-Tapia et S. Whitaker, Momentum jump condition at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid : inertial effects, *Journal of Porous Media*, 1, (1998), 201–217.
- [3] M. Prat, Modeling of heat transfer by conduction in a transition region between a porous medium and an external fluid, *Transport in Porous Media*, 5, (1990), 71–95,
- [4] F. J. Valdes-Parada, B. Goyeau et J. A. Ochoa-Tapia, Diffusive mass transfer between a microporous medium and an homogeneous fluid : Jump boundary conditions, *Chemical Engineering Science*, 61, (2006), 1692–1704.
- [5] S. Pestchanyi et H. Wuerz, 3-D simulation of macroscopic erosion of cfc under iter off-normal heat loads, *Fusion Engineering and Design*, 66, (2003), 271–276.
- [6] V. Borie, J. Brulard et G. Lengellé, An aerothermochemical analysis of carbon-carbon nozzle regression in solid-propellant rocket motors, *24th Joint Propulsion conference*, (Boston, Juillet 1988).
- [7] G. Duffa, G. L. Vignoles, J.-M. Goyhénèche et Y. Aspa, Ablation of carbon-based materials : Investigation of roughness set-up from heterogeneous reactions, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 48, (2005), 3387–3401.
- [8] J. Lachaud, Y. Aspa, G. Vignoles, et J. M. Goyhénèche, Modélisation 3D de l'ablation thermochimique des composites c/c, *Congrès Français de Thermique, SFT2006*(Ile de Ré, 16-19 mai 2006), 125–130.
- [9] P. Chassaing, *Mécanique Des Fluides*, Cépaduès, (2000).
- [10] Y. Achdou, O. Pironneau et F. Valentin, Effective boundary conditions for laminar flows over periodic rough boundaries, *Journal of Computational Physics*, 147, (1998), 187–218.
- [11] Y. Aspa. *Modélisation de l'ablation des composites C/C dans les tuyères*, Thèse, Institut National Polytechnique de Toulouse (2006).
- [12] Y. Aspa, J. Lachaud, G. L. Vignoles et M. Quintard, Identification of ablative properties of C/C composites using inverse simulation, *9th Joint Thermophysics and Heat Transfer Conference*(San Francisco, USA, juin 2006).

Remerciements

Les auteurs remercient la DGA et Snecma Propulsion Solide pour le financement de la thèse de Y.Aspa.