

Simulation et contrôle du calcul de transfert radiatif dans une chambre de reformage de pile à combustible

P. PEREZ*, **D. JOSEPH***, **M. EL HAFI****, **S. LECOQ*****

* : High Performance Computing-Simulation Acceleration, ZA Albitech, 54 rue Gustave Eiffel, 81000 Albi, France

patrice.perez@hpc-sa.com

** École des Mines d'Albi Carmaux, Campus Jarlard, route de Teillet, Albi, France

*** N-GHY, Site Industriel Saint Antoine - ZI Montplaisir, 51 rue Isaac Newton, 81000 ALBI-FRANCE

Résumé – La technologie des piles à combustibles est en plein développement et la simulation des phénomènes thermiques dans le système est un élément crucial à cette étape. En particulier, la durée de vie du réformeur d'hydrogène, soumis à de fortes pressions et de hautes températures, dépend fortement du flux radiatif aux parois et on ne peut donc faire l'économie d'une modélisation et d'une simulation précise du transfert radiatif, prenant en compte les spectres de raies des gaz de combustion. Ce calcul est effectué par une méthode aux ordonnées discrètes et validé en certains points sondes par une méthode de Monte Carlo.

1 Introduction

Dans le contexte environnemental et énergétique actuel, beaucoup d'applications industrielles nécessitent que leurs installations fassent l'objet de simulations préalables. Les logiciels de mécanique des fluides (CFD) doivent permettre de simuler des phénomènes complexes comme la chimie détaillée, les calculs d'écoulements et la thermique dans le cas de géométries multidimensionnelles. La prise en compte détaillée des transferts radiatifs devient cruciale lorsqu'il s'agit de prédire des concentrations d'espèces mineures polluantes ou des flux aux parois. Dans cette optique il est nécessaire d'introduire des solutions radiatives précises, paramétrables, et contrôlables adaptées aux logiciels de CFD couramment utilisés. Parmi ces applications, les systèmes basés sur les piles à combustible performantes constituent un enjeu majeur pour la recherche, avec de nombreuses applications industrielles. En particulier, le procédé de reformage de dihydrogène fait l'objet de toutes les attentions. Pour la mise au point d'un réacteur de reformage, la simulation s'avère être une étape indispensable pour estimer à la fois les proportions de produits des réactions, les performances énergétiques du réacteur et la durée de vie des matériaux constituant l'enceinte du système. La Méthode des Ordonnées Discrètes (MOD) [1, 2, 3] est utilisée pour fournir des solutions radiatives dans l'ensemble du système et contrôlée en certains points sondes par une méthode de Monte Carlo (MCM) [4, 5, 6]. Le code DOMASIUM est utilisé pour fournir la solution par la MOD [3]; les solutions Monte Carlo étant données par le code MCRAD [7]. Les deux codes sont en cours d'intégration au sein d'un logiciel commercial unique nommé RayTherm. Dans une première partie, nous décrivons brièvement la formulation mathématique sur laquelle sont basées les deux méthodes MOD et MCM. Dans une deuxième partie, nous présentons un cas de calcul de chambre de reformage de dihydrogène [8] développée par la société N-GHY induisant une géométrie complexe, décrite par un maillage non-structuré. Les solutions de combustion sont fournies le logiciel STAR-CCM+.

1.1 Méthode aux Ordonnées Discrètes (MOD)

1.1.1 Discrétisation angulaire

Le code DOMASIUM initialement conçu pour la simulation du transfert radiatif couplé à la combustion et adapté à des maillages non structurés est utilisé pour le calcul par la MOD. Le calcul du terme source radiatif en un point donné est basé sur la discrétisation de l'équation de transfert radiatif (ETR) sur un nombre fini N_{dir} de directions $\mathbf{s}_i(\mu_i, \eta_i, \xi_i)$ respectivement associées à un poids w_i , et où μ_i, η_i, ξ_i est un ensemble de cosinus directeurs. Une récente étude de Koch et Becker [9] compare différents types de quadratures angulaires et recommande la quadrature LC_{11} . La quadrature utilisée dans la présente étude sera la quadrature LC_{11} .

1.1.2 Discrétisation spatiale pour des maillages hybrides

L'ETR est résolue pour chaque direction discrète \mathbf{s}_i en utilisant une approche aux volumes finis. L'intégration de l'ETR sur un volume V , limité par une surface Σ , et l'application du théorème de la divergence, conduisent à :

$$\int_{\Sigma} I(\mathbf{s}_i) \cdot \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{n} d\Sigma = \int_V (\kappa I_b - \kappa I(\mathbf{s}_i)) dV \quad (1)$$

où $I(\mathbf{s}_i)$ est la luminance dans la direction \mathbf{s}_i , I_b est la luminance du corps noir, et κ et le coefficient d'absorption. $I(\mathbf{s}_i)$ et I_b sont considérées comme constantes sur le volume V , et on fait l'hypothèse que les luminances sur les faces délimitant le volume sont constantes sur chaque face. Dans un cas monochromatique, le terme source radiatif S_r est alors donné par :

$$S_r = -\nabla \cdot \mathbf{Q}_r = -\kappa \left(4\pi I_b - \sum_{i=1}^{N_{dir}} w_i I(\mathbf{s}_i) \right) \quad (2)$$

où \mathbf{Q}_r est le vecteur flux radiatif. Pour le calcul de $I(\mathbf{s}_i)$, Ströhle et al. [10] ont proposé un schéma de dérivation spatiale basé sur un schéma de flux moyen très utilisé dans le cas de maillages hybrides. Il permet d'obtenir le schéma "Diamond Mean Flux Scheme" (DMFS) qui sera utilisé dans la suite de cet article et qui est plus précis que le schéma "Step" ($\alpha = 1$) [2].

1.1.3 Propriétés spectrales des gaz

Le coefficient d'absorption κ , fortement dépendant du nombre d'onde ν , est calculé en considérant les espèces rayonnantes suivantes : H_2O , CO_2 et CO . La dépendance spectrale du coefficient d'absorption sera ici représentée par un modèle *SNB-ck* [11, 12, 13]. Le traitement du mélange de gaz est obtenu par le même modèle en suivant la méthode de Liu [13] basée sur la limite optiquement mince. Les calculs radiatifs sont effectués $N_{bandes} \times N_{quad}$ fois de manière indépendantes, où $N_{bandes} = 367$ est le nombre de bandes étroites, de largeur $\Delta\eta = 25 \text{ cm}^{-1}$ considérées. Ces bandes permettent de considérer une région du spectre infrarouge allant de 150 cm^{-1} à 9300 cm^{-1} . $N_{quad} = 5$ représente le nombre de points de quadrature pour chaque bande étroite ; une quadrature de Gauss-Legendre est utilisée. En intégrant cette dimension spectrale, le terme source radiatif est donné par :

$$S_{r,MOD} = - \sum_{i=1}^{N_{bandes}} \sum_{j=1}^{N_{quad}} \Delta\nu_i w_{ij} \kappa_{ij} \left(4\pi \bar{I}_{b,i} - \sum_{k=1}^{N_{dir}} w_k I_{ij}(\mathbf{s}_k) \right) \quad (3)$$

où $\bar{I}_{b,i}$ est la luminance de corps noir dans la bande étroite i .

1.2 Méthode de Monte Carlo formulée en échanges nets

Pour la MCM le code utilisé est MCRAD [7]. Ce code fournit les termes sources radiatifs, ainsi que les erreurs statistiques associées et utilise des techniques de base de la synthèse d'images. Il repose sur une formulation intégrale de l'ETR en puissances nettes échangées (NEF) et satisfait le principe de réciprocité des chemins lumineux [14]. Le modèle de propriétés spectrales utilisé est basé sur un modèle statistique à bandes étroites décrit par le modèle de Malkmus [15]. En considérant par ailleurs un modèle en k-distribution, les puissances nettes échangées entre deux volumes, un volume et une surface, et deux surfaces sont exprimées par :

$$\begin{aligned}\varphi_{V_i \leftrightarrow V_j} &= \sum_{n=1}^{n_b} \Delta\eta_n \int_0^1 dg \int_{V_i} dV_i \int_{V_j} dV_j \frac{1}{l_{ij}^2} \kappa(g) \times \exp\left[-\int_{l_i}^{l_j} \kappa(g) dl\right] \kappa(g) \Delta I_{b,\eta} \\ \varphi_{V_i \leftrightarrow S_j} &= \sum_{n=1}^{n_b} \Delta\eta_n \int_0^1 dg \int_{V_i} dV_i \int_{S_j} dS_j \frac{\vec{u} \cdot \vec{n}_j}{l_{ij}^2} \kappa(g) \times \exp\left[-\int_{l_i}^{l_j} \kappa(g) dl\right] \Delta I_{b,\eta} \\ \varphi_{S_i \leftrightarrow S_j} &= \sum_{n=1}^{n_b} \Delta\eta_n \int_0^1 dg \int_{S_i} dS_i \int_{S_j} dS_j \frac{(\vec{u} \cdot \vec{n}_i)(\vec{u} \cdot \vec{n}_j)}{l_{ij}^2} \times \exp\left[-\int_{l_i}^{l_j} \kappa(g) dl\right] \Delta I_{b,\eta}\end{aligned}$$

où l_{ij} est la longueur entre les points i et j , \vec{n}_i et \vec{n}_j sont les normales aux surfaces aux points i et j , et \vec{u} est le vecteur directeur de i vers j . g représente la cumulée de la fonction de distribution des coefficients d'absorption dans une bande étroite. Pour des soucis de clarté, la formulation ici tient compte de parois noires pour les conditions aux limites ; les surfaces rencontrées sont considérées comme des corps noirs. La généralisation de cette formulation à des parois grises est décrite dans [5].

2 Résultats : application à une chambre de reformage d'huile de tournesol

La chambre de reformage, présentant une symétrie cylindrique en dehors des zones d'injection, fait 420 mm de long pour 102 mm de large et la partie interne est recouverte de céramique. De l'air préchauffé composé à 79% d'azote et à 21% d'oxygène est injecté dans la chambre de reformage et rencontre un mélange d'huile de tournesol et de vapeur d'eau également préchauffé (Fig. 2). Dans la configuration étudiée, les réactifs sont préchauffés à 900°C et la pression d'injection est de 10 bars. Pour la simulation avec le logiciel STAR-CCM+, une hypothèse de paroi adiabatique est retenue et trois réactions chimiques sont considérées :

Réaction de combustion : $C_{56,66}H_{99,93}O_{6,31} + 50,3215O_2 \rightarrow 56,66CO + 49,965H_2O$

Réaction de vapo-reformage : $C_{56,66}H_{99,93}O_6 + 50,66H_2O \rightarrow 56,66CO + 98,90H_2$

Réaction de shift : $CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$

La réaction de combustion est responsable de l'élévation de température jusqu'à un maximum observé de 2600 K, avec une température moyenne de 2300 K dans la partie de sortie de la chambre (Fig. 2). On obtient donc un milieu chaud, sous haute pression, et où sont présentes des espèces rayonnantes comme la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone, ou le monoxyde de carbone. L'injection des réactifs est réglée de telle sorte qu'il n'y ait pas de formation de suie. Les résultats précédents ayant été obtenus sans tenir compte des transferts de chaleur par rayonnement, on injecte ces solutions dans les codes de transfert radiatif. On mesure ainsi l'approximation réalisée en négligeant le rayonnement. La solution fournie par DOMASIUM est contrôlée en quatre points (notés A, B, C, D sur la figure 2) par la méthode de Monte Carlo décrite précédemment. Le point A est situé dans la zone d'injection de l'air, le point B est dans la zone d'injection du combustible, les points C et D sont situés dans la zone de sortie des produits de combustion. Le flux radiatif aux parois (Fig. 2) maximum est de l'ordre de $200kW/m^2$. Les termes

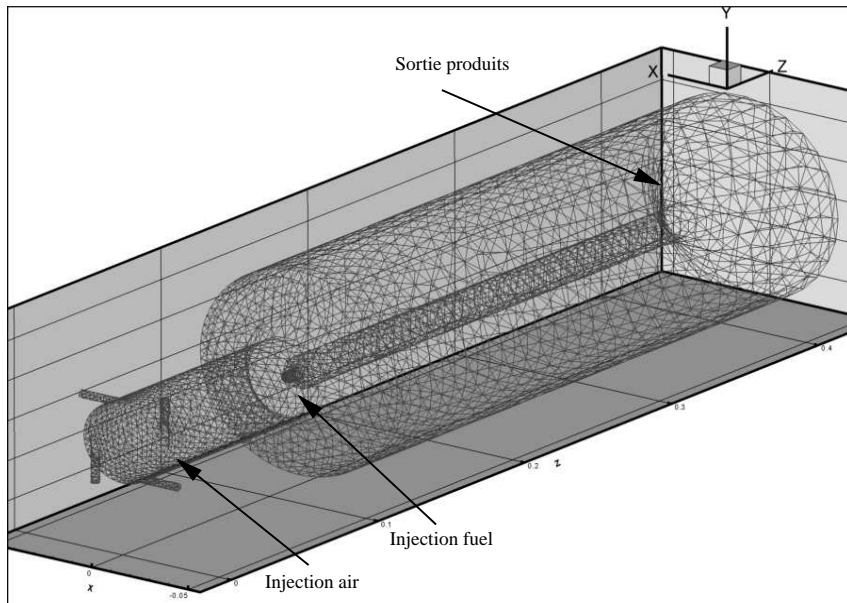


FIG. 1 – Géométrie et maillage de la chambre de reformage.

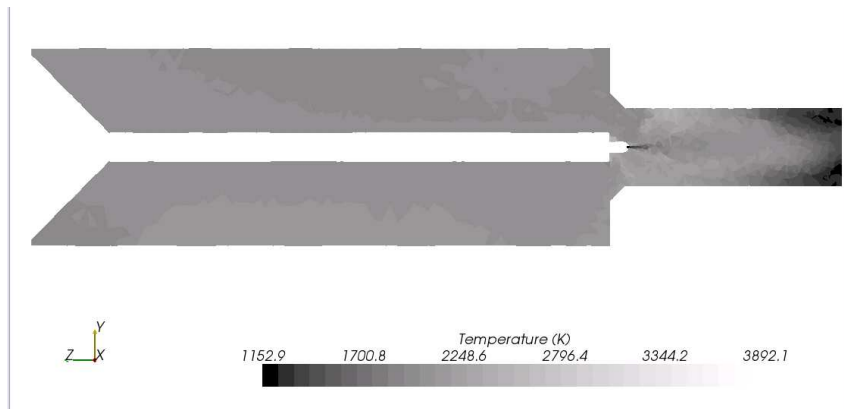


FIG. 2 – Température sur un plan de coupe de la chambre (K).

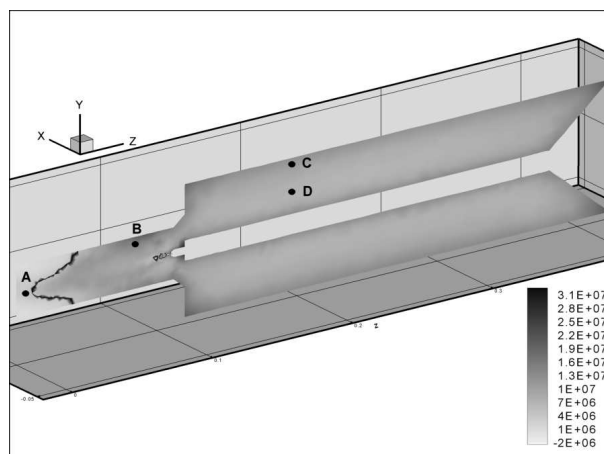


FIG. 3 – Termes sources radiatifs.

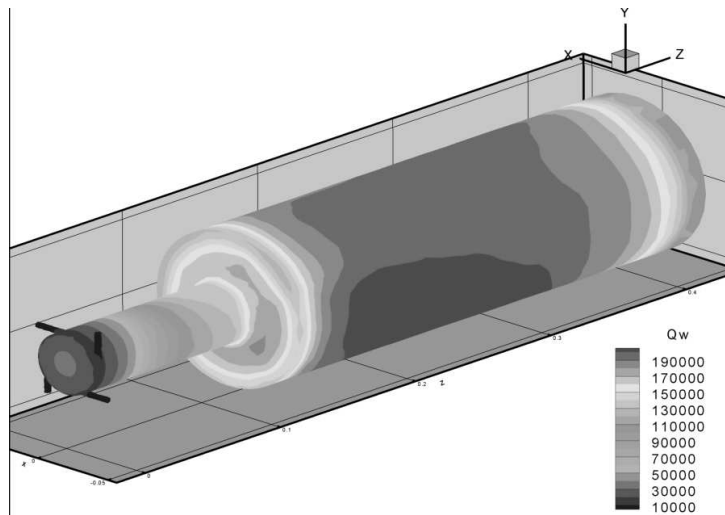


FIG. 4 – Flux radiatif aux parois.

sources radiatifs (Fig. 2) sont relativement importants (de l'ordre de 6 à 18 MW/m^3) mais les échanges radiatifs volumiques se font majoritairement à courte distance en raison d'une épaisseur optique élevée due à la pression de 10 bars dans la chambre de combustion. Le contrôle par la méthode de Monte Carlo montre des erreurs faibles aux points A et B (respectivement de 4 % et 2%), mais qui deviennent notables pour les points C et D (de l'ordre de 11%). Les points C et D sont situés dans des zones de fortes épaisseurs optiques pour lesquelles l'approximation en volumes finis sur laquelle est basée la méthode aux ordonnées discrètes atteint ses limites. Dans le volume de gaz, une partie minoritaire de l'énergie rayonnée est transférée aux parois si le volume rayonnant est situé loin de celles-ci (rapport de 1 à 10 pour l'échange radiatif net avec la paroi si on considère un point éloigné ou un point proche de la paroi). Le flux pariétal de l'ordre de $200kW/m^2$ est majoritairement le fait des couches de gaz situées au voisinage de la paroi.

3 Conclusion et perspectives :

L'étude a permis de calculer les termes sources radiatifs et les flux rayonnés aux parois d'une chambre de reformage, ce qui s'avère être un résultat crucial dans une étape de mise au point où des problèmes de tenue des matériaux et de durée de vie des systèmes sont un enjeu majeur. L'utilisation de la MCM comme contrôle d'une solution DOM permet d'estimer l'erreur commise par cette dernière ; elle peut atteindre 11% à certains endroits pour la configuration étudiée. A un point de fonctionnement à 10 bars, les flux rayonnés aux parois sont majoritairement dus aux couches de gaz situées à proximité en raison d'une épaisseur optique importante. D'autres pressions de fonctionnement sont actuellement testées et un enjeu important d'études futures porte sur la détermination de conditions de pressions pour lesquelles on obtient un minimum ou un maximum de flux.

Remerciements :

Les auteurs sont reconnaissants envers la société N-GHY qui a permis de publier les informations concernant la chambre de reformage d'huile de tournesol, et envers la société CD-adapco qui a permis, par une collaboration active, d'accéder aux données produites par le code STAR-CCM+ afin d'en faire le post-traitement. Cette étude a été effectuée dans le cadre du projet THERMOCONV financé par l'ADEME.

Références

- [1] Joseph D. *Modélisation des transferts radiatifs en combustion par méthode aux ordonnées discrètes sur des maillages non structurés tridimensionnels*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, (2004).
- [2] Liu J., Shang H.M., Chen Y.S., and Wang T.S. Development of an unstructured radiation model applicable for two dimensional planar, axisymmetric and 3-dimensional geometries. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 66 :17–33, (2000).
- [3] Joseph D. and El Hafi M., Fournier R., and Cuenot B. Comparison of three spatial differencing schemes in discrete ordinates method using three-dimensional unstructured meshes. *Int. J. Thermal Sci.*, 44(9) :851–864, (2005).
- [4] Perez P. *Algorithmes de synthèse d'images et propriétés spectrales des gaz de combustion : méthode de Monte Carlo pour la simulation des transferts radiatifs dans les procédés à haute température*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, (2003).
- [5] Perez P., El Hafi M., Coelho P.J., and Fournier R. Accurate solutions for radiative heat transfer in two-dimensional axisymmetric enclosures with gas radiation and reflective surfaces. *Numerical Heat Transfer, Part B-Fund.*, 46 :39–63, (2005).
- [6] Tessé L., Dupoirieux F., and Taine J. Monte carlo modeling of radiative transfer in a turbulent sooty flame. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 47 :555–572, (2004).
- [7] Jensen K.A., Ripoll J.F., Wray A. A., Joseph D., and El Hafi M. On various modeling approaches for radiative heat transfer in pool fires. *accepted in Combustion and Flame*, (2006).
- [8] Marty P. *Procédé et dispositif de génération d'hydrogène par conversion à haute température avec vapeur d'eau*. PhD thesis, Université de Perpignan, (2002).
- [9] Koch R. and Becker R. Evaluation of the Quadrature schemes for the Discrete Ordinates Method. *Lybaert P., Feldheim V., Lemonnier D., Selçuk N. (Eds), Proceedings of Eurotherm73 on Computational Thermal Radiation in Participating Media, Eurotherm Series 11, Elsevier, Paris, France*, pages 59–74, (2003).
- [10] Strohle J., Schnell U., and Hein K.R.G. A mean flux discrete ordinates interpolation scheme for general coordinates. In *3rd International Conference on Heat Transfer, Antalya*, (2001).
- [11] Soufiani A. and 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 . *Int. J. Heat Mass Transfer*, 40(4) :987–991, (1997).
- [12] Liu F., Smallwood G.J., and Gulder O.L. Application of the statistical narrow-band correlated-k method to low-resolution spectral intensity and radiative heat transfer calculations - effects of the quadrature scheme. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 43 :3119–3135, (2000).
- [13] Liu F., Smallwood G.J., and Gulder O.L. Application of the statistical narrow-band correlated-k method to non-grey gas radiation in CO_2 - H_2O mixtures : approximate treatments of overlapping bands. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 68 :401–417, (2001).
- [14] J.S.A. Green. Division of radiative streams into internal transfer and cooling to space. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 93 :371–372, (1967).
- [15] W. Malkmus. Random lorentz band model with exponential-tailed s-1 line-intensity distribution function. *Journal of Optical Society of America*, 57 :323–329, (1967).