

Impact des sondes de prélèvement sur la mesure d'espèces réactives en oxydation sans flamme

Delphine LUPANT*, Barbara PESENTI, Paul LYBAERT

UMONS – Université de Mons, Place du Parc, 20 – 7000 Mons, Belgique

Faculté Polytechnique – Service de Thermique et Combustion, Rue de l'épargne, 56 – 7000 Mons

* (auteur correspondant : Delphine.Lupant@umons.ac.be)

Résumé - Des mesures de composition au sein d'une chambre de combustion en régime d'oxydation sans flamme sont obtenues grâce à deux sondes. La première est complètement refroidie ('sonde d'analyse') tandis que l'extrémité de la seconde ne l'est pas pour permettre une mesure de température ('canne à aspiration'). L'étude comparative des champs d'espèces obtenus avec les deux sondes a montré que l'utilisation de la canne à aspiration comme outil de prélèvement peut introduire une erreur considérable liée à la réaction d'oxydation qui se poursuit dans la partie non refroidie de la canne.

Nomenclature

P puissance, kW
 Q débit, $m^3 \cdot h^{-1}$
 T température, K

X fraction volumique
Symboles grecs
 λ facteur d'air

1. Introduction

L'oxydation sans flamme est une technique de combustion assez récente qui a été développée dans le but de réduire les émissions d'oxydes d'azote (NO_x) tout en permettant de préchauffer l'air à haute température afin d'augmenter le rendement de combustion. Elle se caractérise entre autres par une zone réactionnelle qui s'étend sur une large portion du volume de la chambre de combustion et qui n'émet pas ou peu dans le domaine visible [1]. Le Service de Thermique et Combustion de la Faculté Polytechnique de l'Université de Mons s'est équipé d'une chambre de combustion à l'échelle de laboratoire sur laquelle l'identification de la zone réactionnelle peut se faire de manière intrusive en réalisant des cartographies de la température et de la composition chimique du mélange réactif. Les zones dans lesquelles la température est élevée et où le contenu en espèces intermédiaires de la réaction d'oxydation est maximum sont assimilées à l'endroit où la réaction a lieu.

C'est dans ce contexte que s'insère l'étude comparative présentée dans cet article. En effet, deux outils de prélèvement sont disponibles pour réaliser les mesures : **la sonde d'analyse**, complètement refroidie, qui est destinée à prélever l'échantillon de gaz à analyser, et **la canne à aspiration**, dont l'extrémité non refroidie comporte un thermocouple, qui est utilisée pour relever la température du gaz. Etant donné que la canne à aspiration nécessite également le prélèvement d'un volume de gaz, son contenu pourrait être analysé de manière à obtenir simultanément et précisément au même point la mesure de température et de composition chimique. Cette opération réduirait de moitié de la durée d'une campagne d'essais et diminuerait le coût de l'instrumentation, ce qui est particulièrement intéressant à l'échelle (semi-)industrielle. Néanmoins, étant donné que l'extrémité de la canne à aspiration n'est pas refroidie, la réaction d'oxydation pourrait s'y poursuivre, ce qui introduirait une erreur sur la mesure de composition chimique. La comparaison des mesures de concentration obtenues avec chaque sonde est présentée ici de manière à vérifier si l'erreur commise avec la canne à aspiration est acceptable. Les observations obtenues expérimentalement sont ensuite comparées à une simulation numérique de la cinétique chimique de l'échantillon de gaz, dans la partie non refroidie de la canne à aspiration.

2. Dispositif expérimental

2.1. La chambre de combustion

La chambre de combustion a été dimensionnée pour une puissance de 30 kW [2]. Son volume interne est un parallélépipède de base carrée de 0.35 m de côté et de 1 m de haut. Elle est alimentée par la base en air et gaz naturel, et les fumées sont collectées au travers d'orifices disposés sur les parois verticales à 0.9 m de la base. Le brûleur est constitué de 3 injecteurs : un injecteur d'air placé au centre de la base et deux injecteurs de gaz inclinés de 11° disposés symétriquement de part et d'autre (Figure 1). La puissance transmise à la charge est variable grâce à quatre tubes refroidis par circulation d'eau dont l'immersion est réglable. Enfin, l'air de combustion peut être préchauffé électriquement jusqu'à 1000°C .

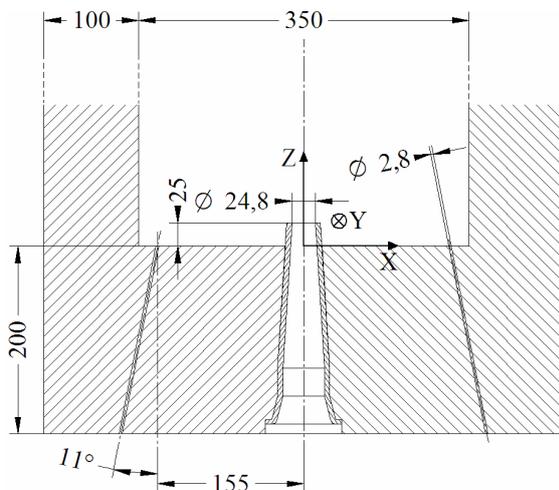


Figure 1 : Coupe de la base de la chambre dans le plan des injecteurs. Unité : mm. [3]

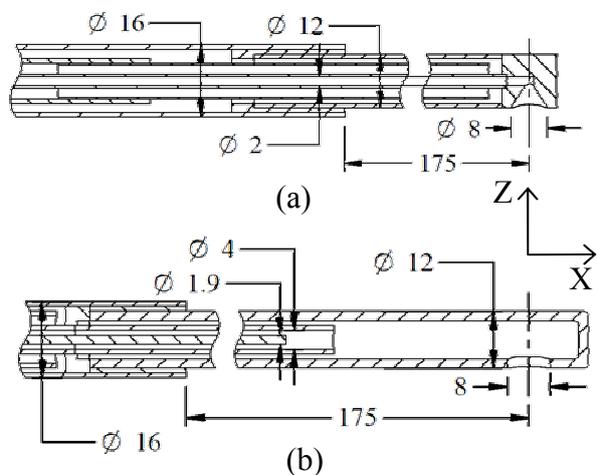


Figure 2 : Détail des sondes : (a) sonde d'analyse, (b) canne à aspiration. Unité : mm. [3]

2.2. Les sondes de prélèvement

La Figure 2 présente le détail des deux sondes de prélèvement utilisées pour étudier le plan de symétrie passant par les injecteurs (Z,X). Ces sondes sont introduites perpendiculairement à la direction de l'écoulement, l'orifice de prélèvement étant par conséquent placé sur la paroi latérale de la sonde. Les mesures de température et de composition chimique sont relevées toutes les 2 secondes et moyennées sur 2 minutes. Les cartographies sont ensuite obtenues en interpolant entre les valeurs moyennes en chaque point de mesure (de -0,15 m à 0,15 m par pas de 3 cm dans la direction X et de 0,11 m à 0,71 m par pas de 4 cm dans la direction Z). Le dispositif d'analyse de gaz est constitué d'une ligne chauffée, d'un système de condensation et de trois analyseurs permettant de mesurer le contenu en O_2 , CH_4 , CO , CO_2 et NO_x de l'échantillon sec [3].

La *sonde d'analyse* (Figure 2, a) est refroidie par circulation d'eau pour figer l'état chimique de l'échantillon dès le prélèvement en vue de l'analyse de sa composition chimique. La vitesse de refroidissement a été estimée à 1×10^8 K/s à partir des coefficients de transfert locaux. Cette vitesse de refroidissement doit être suffisante pour assurer une mesure correcte du contenu en CO étant donné que c'est l'unique espèce intermédiaire à partir de laquelle la zone réactionnelle peut être identifiée. C'est effectivement le cas, puisque d'après Lallemand et al. [4], elle doit être comprise entre 1×10^7 et 1×10^8 K/s.

La *canne à aspiration* (Figure 2, b) est en partie refroidie pour faciliter sa manipulation à haute température, et son extrémité est constituée de deux écrans en alumine protégeant un thermocouple de type S de 0.25mm de diamètre. La partie non refroidie est assez longue par rapport à ce qui est généralement rencontré, car elle a été choisie pour minimiser le refroidissement du système lorsque l'orifice de la canne est positionné dans l'axe du jet d'air. Le débit d'aspiration optimum est obtenu grâce à la pompe du système d'analyse des gaz, il est identique à celui appliqué à la sonde d'analyse (3.2 l/min). L'échantillon prélevé peut donc être analysé et sa composition peut être déterminée de manière suffisamment précise si le temps de séjour de l'échantillon dans la partie non refroidie de la canne à aspiration (estimé à 1×10^{-2} s) est inférieur au délai d'inflammation du mélange. Cette condition peut être envisagée pour l'oxydation sans flamme étant donné que la dilution ralentit la vitesse de réaction du mélange [5].

2.3. Conditions opératoires

La zone réactionnelle a été étudiée au préalable [2], mais de manière qualitative, à partir de l'émission spontanée des radicaux OH dans l'UV au travers d'une fenêtre étroite placée sur une paroi verticale parallèle au plan des injecteurs. Il s'est avéré que la réaction avait lieu de part et d'autre de l'axe du jet d'air, à une position Z correspondant au point de confluence des jets de réactifs (Régime A). Cependant, lorsque la température diminue en dessous d'une certaine valeur qui dépend du facteur d'air considéré, la zone réactionnelle s'éloigne de la sortie du brûleur de manière à former une seule zone d'intensité plus faible dans l'axe du jet d'air (Régime B). La fluctuation de la zone autour de sa position moyenne est en outre plus importante que pour le Régime A. Les essais détaillés ont donc été réalisés pour deux points de fonctionnement illustrant les deux formes de la zone réactionnelle (Tableau 1). Les émissions des radicaux OH correspondantes sont représentées sur la Figure 3.

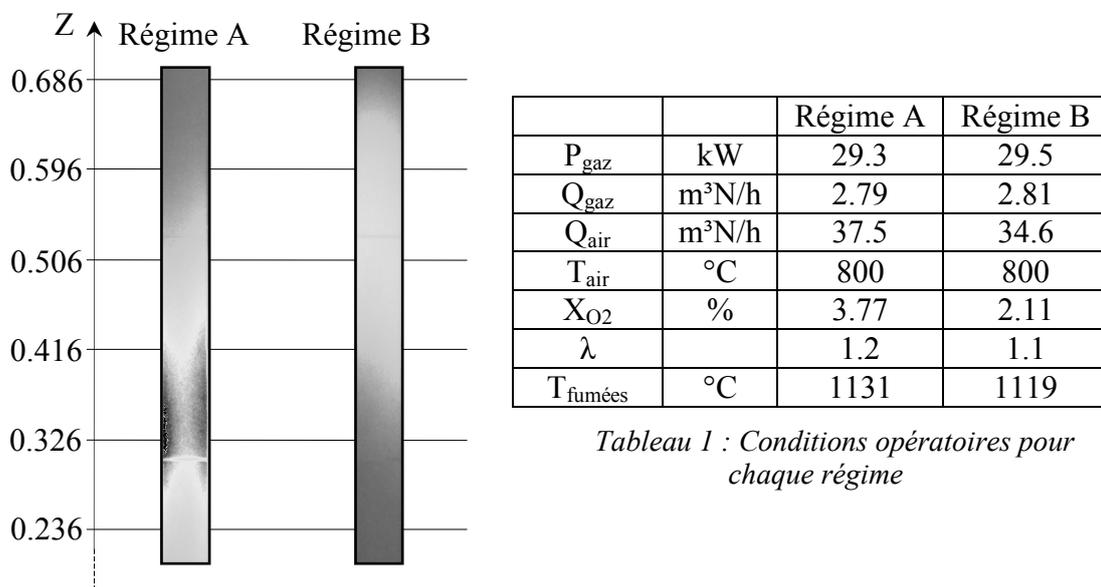


Tableau 1 : Conditions opératoires pour chaque régime

Figure 3 : Emission spontanée des radicaux OH dans l'UV pour chaque régime

3. Résultats

3.1. Comparaison des champs de concentration en CO

La comparaison des champs d'espèces chimiques obtenus avec chaque sonde permet de vérifier si l'utilisation de la canne à aspiration est suffisamment fiable. La discussion porte essentiellement sur les champs de CO dans le plan de symétrie passant par les injecteurs puisque c'est la seule espèce intermédiaire dont la concentration est mesurée. La Figure 4 présente les champs de CO obtenus avec chacune des sondes pour les deux points de fonctionnement considérés. Pour le **Régime A**, la forme et la position de la zone réactionnelle, assimilée à la zone dans laquelle le contenu en CO est élevé, est similaire pour les deux sondes et correspond à la visualisation OH présentée au paragraphe 2.3. Deux zones peuvent être identifiées de part et d'autre de l'axe, mais les gradients de concentration au voisinage de l'axe du jet d'air sont plus importants avec la canne à aspiration. Par contre, pour le **Régime B**, le champ de CO obtenu avec la canne à aspiration ne correspond pas à celui mesuré avec la sonde d'analyse, ni à la visualisation OH. En effet, deux zones à concentration en CO élevée peuvent être identifiées de part et d'autre de l'axe, comme dans le Régime A.

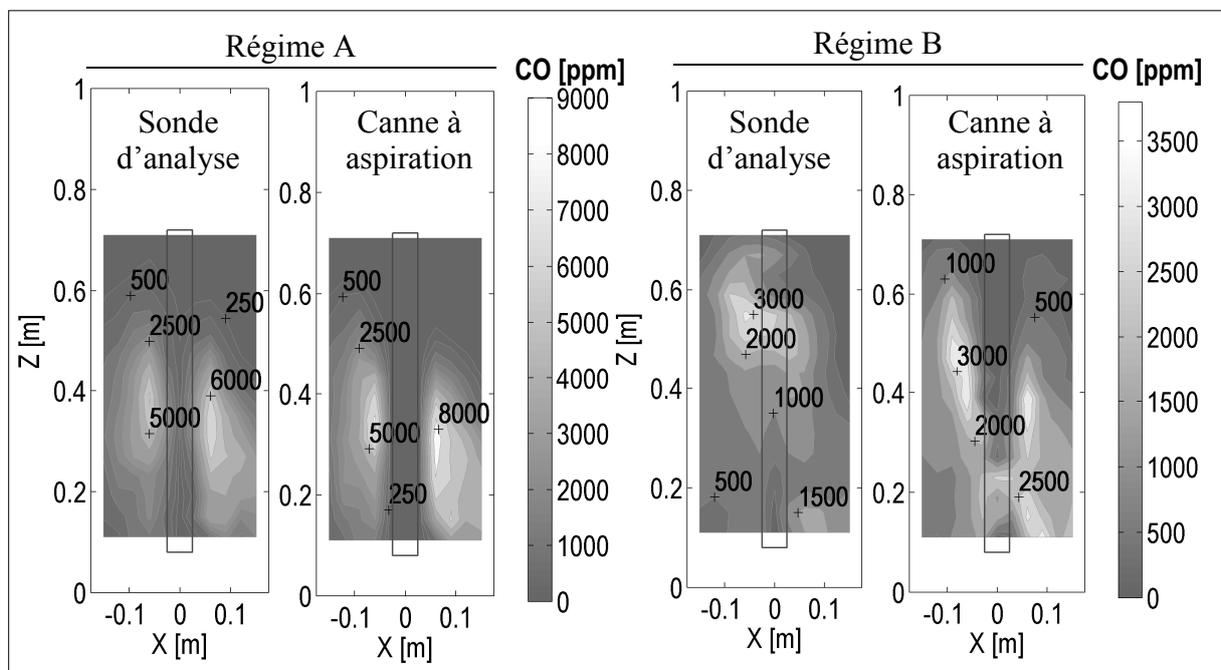


Figure 4 : Champs de concentration en CO (base sèche) dans le plan (Z,X) obtenus avec chaque sonde pour les deux régimes étudiés. Le rectangle repère la zone accessible pour la visualisation UV.

Les différences sont significatives au voisinage de l'axe du jet d'air et particulièrement pour le Régime B. Cette zone réunit des conditions favorables à la réaction d'oxydation, c'est-à-dire une quantité élevée de comburant à haute température. La réaction pourrait donc se poursuivre dans l'extrémité non refroidie de la canne à aspiration pour autant que le temps de séjour dans cette partie soit supérieur au délai d'ignition de la réaction. Les différences des champs de concentration en CH_4 , O_2 et CO_2 se situent également autour de l'axe et sont cohérentes par rapport à cette hypothèse.

3.2. Simulation de la cinétique chimique de l'échantillon dans la canne à aspiration

L'hypothèse de la réaction d'oxydation qui se poursuit dans l'extrémité de la canne à aspiration peut être vérifiée par simulation grâce au logiciel de cinétique chimique Cosilab 2.3.0.

En chaque point de mesure, le volume correspondant à la partie non refroidie de la canne à aspiration est assimilé à un réacteur parfaitement mélangé adiabatique à pression atmosphérique constante. La composition de l'échantillon à l'entrée de la canne est supposée correspondre à celle mesurée avec la sonde d'analyse, sa température étant celle relevée par la canne à aspiration au même point. L'évolution temporelle de la température et de la composition au sein du réacteur est alors calculée grâce au mécanisme réactionnel GRI 3.0 [6]. Enfin, la composition est relevée après un temps correspondant au temps de séjour de l'échantillon dans la partie non refroidie de la canne, lui-même évalué à partir du débit aspiré et de la masse volumique locale du mélange de gaz.

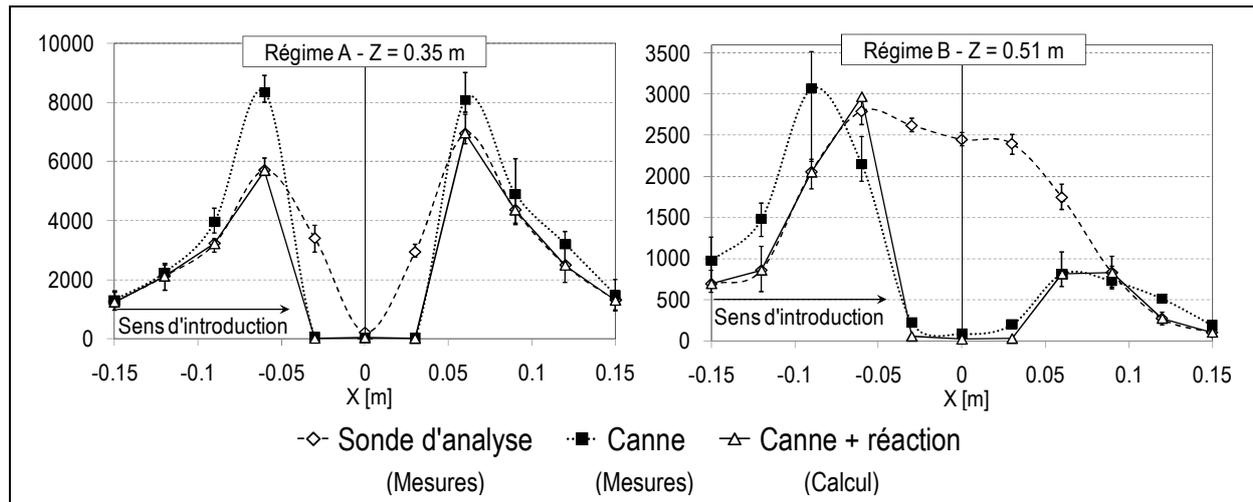


Figure 5 : Profils de concentration en CO au sein de la zone réactionnelle pour chaque régime.

La Figure 5 présente les profils de concentration en CO au cœur de la zone réactionnelle pour chaque régime (en $Z = 0.35$ m pour le Régime A et $Z = 0.51$ m pour le Régime B). Trois courbes sont comparées pour chaque profil. Les deux courbes expérimentales obtenues avec chacune des sondes comportent des barres d'erreur représentant la variation maximale des valeurs instantanées autour de la moyenne. La troisième courbe reprend la concentration en CO obtenue après la simulation de la réaction dans la partie non refroidie de la canne à aspiration. Elle est parfaitement superposée à la courbe correspondant à la sonde d'analyse si aucune réaction n'a lieu dans la canne.

Pour le **Régime A**, il s'avère que la réaction se poursuit pour les points de mesure situés entre $X = -0.03$ m et $X = 0.03$ m, ce qui a pour effet de consommer l'entière du CO présent dans l'échantillon. C'est pourquoi le champ obtenu avec la canne à aspiration présente des gradients de concentration importants autour de l'axe.

Pour le **Régime B**, le temps de séjour dans l'extrémité de la canne est plus élevé que le délai d'ignition pour les mêmes points autour de l'axe. Il est par contre du même ordre de grandeur que le délai d'ignition pour $X = 0.06$ m, ce qui explique pourquoi le CO n'est que partiellement consommé en ce point. Les différences observées entre les deux profils expérimentaux entre $X = -0.15$ m et $X = -0.06$ m, ne sont pas imputables à la réaction chimique dans l'extrémité de la canne, puisque dans ce cas le délai d'ignition est plus important que le temps de séjour. Cela peut s'expliquer par la fluctuation plus importante de la zone réactionnelle pour ce régime. En effet, les barres d'erreur reflètent une grande variation des contenus en CO en ces différents points. Les profils pourraient se rapprocher si le temps d'intégration de la mesure était augmenté.

4. Conclusion

La question de l'utilisation d'une canne à aspiration, initialement destinée à la mesure de température d'un gaz, en tant qu'outil de prélèvement pour l'analyse de sa composition s'est posée dans le cas particulier de la caractérisation d'un régime d'oxydation sans flamme. Cela représenterait un gain de temps non négligeable dans le cadre de la réalisation de cartographies détaillées puisque température et composition au sein d'une chambre de combustion seraient relevées simultanément. Il faut néanmoins que l'erreur commise reste acceptable. En effet, étant donné que l'extrémité de la canne n'est pas refroidie pour permettre la mesure de température, la réaction pourrait s'y poursuivre si l'état du mélange au point de mesure engendre un délai d'ignition inférieur au temps de séjour dans la partie non refroidie de la canne.

Les cartographies d'espèces chimiques obtenues avec une sonde d'analyse (complètement refroidie) et une canne à aspiration sur une chambre de combustion fonctionnant en oxydation sans flamme ont donc été comparées. En particulier, l'examen des champs de CO a permis de vérifier que la position et la forme de la zone réactionnelle pouvait être influencée par l'instrument de prélèvement utilisé. Deux régimes de fonctionnement ont été testés. Pour le régime le plus stable, bien que les gradients de concentration à limite de la zone réactionnelle soient plus importants avec la canne à aspiration, la forme et la position de la zone réactionnelle ne sont pas modifiées. Par contre, les différences observées sont significatives pour le second régime, correspondant à une zone réactionnelle détachée du brûleur et fluctuant de manière plus importante autour de sa position moyenne. En effet, on identifie deux zones réactionnelles avec la canne à aspiration alors qu'il n'y en a qu'une en réalité. Cela pourrait donc non seulement conduire à des conclusions erronées lors de la caractérisation expérimentale, mais également à un mauvais choix de paramètres des modèles de combustion lors de la validation de la simulation numérique en se basant sur un champ d'espèces qui ne correspond pas à la réalité. La simulation numérique de la cinétique chimique de l'échantillon de gaz au sein de l'extrémité de la canne a montré que les différences observées expérimentalement étaient dues à la réaction qui a lieu en certains points pour lesquels le délai d'ignition est inférieur au temps de séjour.

L'utilisation de la canne à aspiration comme outil de prélèvement est donc également à éviter dans le cas de l'oxydation sans flamme, puisqu'elle introduit une erreur considérable sur la mesure de composition qui ne peut être déterminée a posteriori.

Références

- [1] J.A. Wüning, J.G. Wüning, Flameless oxidation to reduce thermal NO-formation, *Prog. Energy Combust. Sci.*, 23 (1997) 81–94.
- [2] S. Murer, B. Pesenti, P. Lybaert, Characterization of flameless combustion of natural gas in a laboratory scale furnace, *Proc. European Combustion Meeting* (Louvain-La-Neuve, Belgium, 2005).
- [3] D. Lupant et al., Influence of probe sampling on reacting species measurement in diluted combustion, *Exp. Therm. Fluid. Sci.*, In Press (2009)
- [4] N. Lallemand, J. Dugué, R. Weber, Measurement techniques for studying oxy-natural gas flames, *J. Inst. Energy*, 76 (2003) 38–53.
- [5] D. Tabacco, C. Innarella, C. Bruno, Theoretical and numerical investigation on flameless combustion, *Combust. Sci. Technol.*, 147 (7) (2002) 1–35.
- [6] Gregory P. Smith, David M. Golden, Michael Frenklach, Nigel W. Moriarty, Boris Eiteneer, Mikhail Goldenberg, C. Thomas Bowman, Ronald K. Hanson, Soonho Song, William C. Gardiner, Jr., Vitali V. Lissianski, Zhiwei Qin. <http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/>.