



SOLVAY

asking more from chemistry®

Utilisation et challenges de la CFD pour des simulations industrielles

Nicolas Perret

R&I/ARTI/DIPT - AMT



SOMMAIRE

1. Contexte / Attentes autour de la CFD
 2. Focus sur la simulation multiéchelle d'un procédé de DeNOx SNCR
- Conclusion



SOMMAIRE

1. Contexte / Attentes autour de la CFD
 2. Focus sur la simulation multiéchelle d'un procédé de DeNOx SNCR
- Conclusion

Qui sommes nous?

Un acteur clé de l'industrie Chimique mondiale



Fondé en 1863 par Ernest Solvay, le groupe Solvay est une entreprise **Globale**, avec une base historique Européenne dont le siège est basé à Bruxelles.

Nos forces

- **90% des ventes** réalisées dans des marchés pour lesquels Solvay figure au **top 3 des producteurs mondiaux**
- **~ 40% des ventes** dans des marchés en forte croissance
- **Portefeuille équilibré** d'activités
- Culture de **développement durable, innovation and excellence opérationnelle**

€12.4bn

Chiffre d'affaires

€2.1bn

REBITDA

111

SITES INDUSTRIELS MAJEURS

13

SITES R&I MAJEURS

29,100

EMPLOYES
55 PAYS

Domaines d'intervention

- **Excellence opérationnelle et ingénierie**
 - Optimisation, revamping, dégivage, troubleshooting
 - Evaluation d'équipements procédé de nouvelles unités
- **Recherche & Innovation**
 - Conception, intensification, optimisation, extrapolation de nouveaux procédés



Une grande variété de problématiques

Besoin d'outils polyvalents, éprouvés sur un large spectre de modèles

**VALIDATION EN INTERNE DES MODELES PRIMORDIALE POUR LA
FIABILITE DE L'UTILISATION**

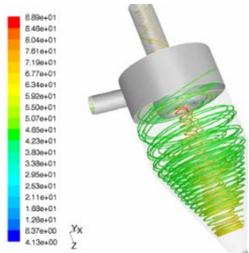
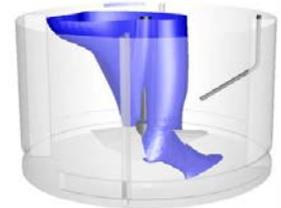
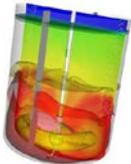
BALANCE PRECISION / DELAIS A PRENDRE EN COMPTE

Homogénéisation

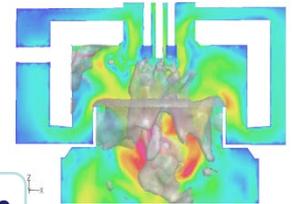
Couplage écoulement / Chimie

Des écoulements très souvent caractérisés par la présence

- De réactions chimiques
- D'une ou plusieurs phases dispersées



Path Lines Colored by Velocity Magnitude (m/s)



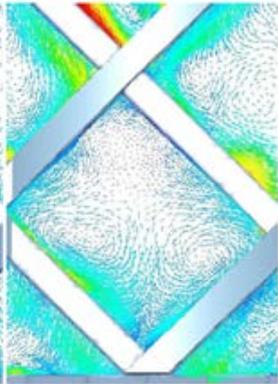
Séparation

Combustion

Un outil complémentaire à disposition du GP

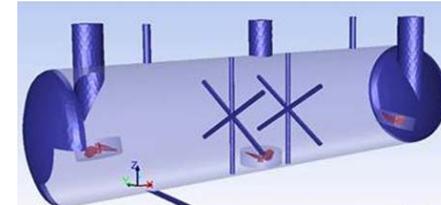
La CFD apporte des réponses différentiantes par rapport aux approches traditionnelles

Visualisation locale des écoulements



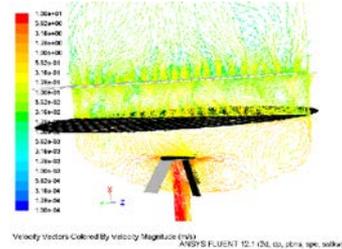
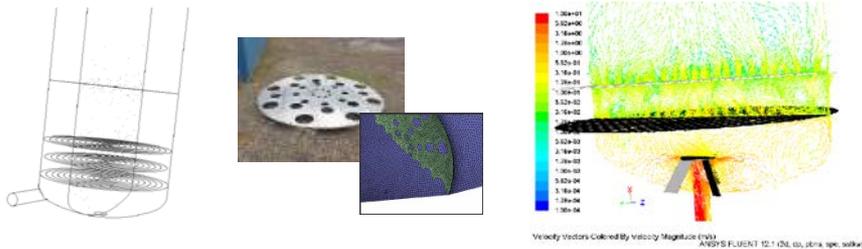
Détection de phénomènes locaux (convection en mélangeur statique)

Etude de configurations non conventionnelles



Corrélations pas toujours adaptées aux cas industriels, régulièrement exotiques (cuve agitée inclinée munie de plusieurs agitations)

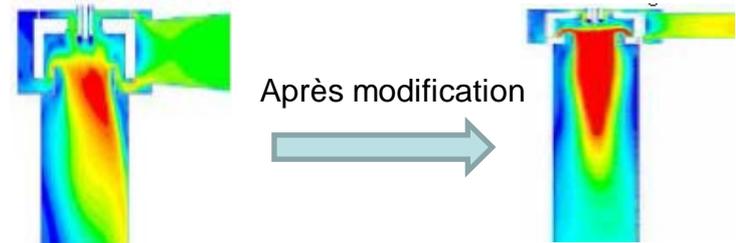
Rationalisation des essais expérimentaux



Velocity Vectors Colored By Velocity Magnitude (m/s)
ANSYS FLUENT 12.1 (32-bit, intel, spc, win64)

Seules les solutions les plus prometteuses sont évaluées (diminution voire suppression d'essais d'internes en maquette froide)

Evaluation de modifications industrielles et analyse des risques



Le recours au pilotage des solutions n'est pas toujours possible (rajout d'internes au sein d'un four)

Environnement d'une étude

- **Analyse du problème**
- **Définition du calcul:**
 - Géométrie: CAO
 - Choix des modèles physiques spécifiques à l'étude
 - Maillage et Conditions limites
- **Calcul**
- **Vérification des résultats & nouvelle étape de calcul éventuelle**
- **Exploitation des résultats**
vitesse, mélange, temps mélange, DTS, ségrégation, ...



Implication des équipes opérationnelles: usine, expérimentateurs labo...
'Listen to your operators'

Validation du comportement des modèles sur expériences benchmark et si besoin:

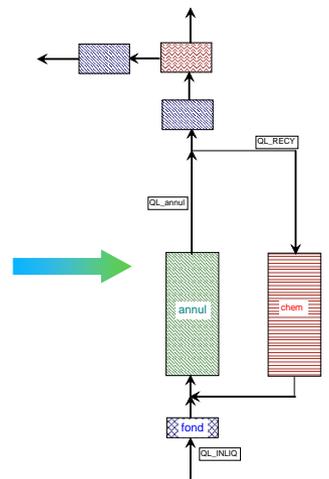
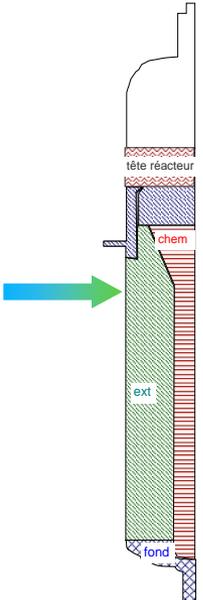
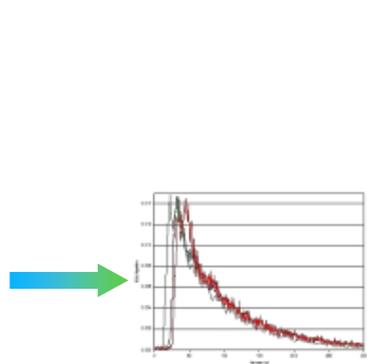
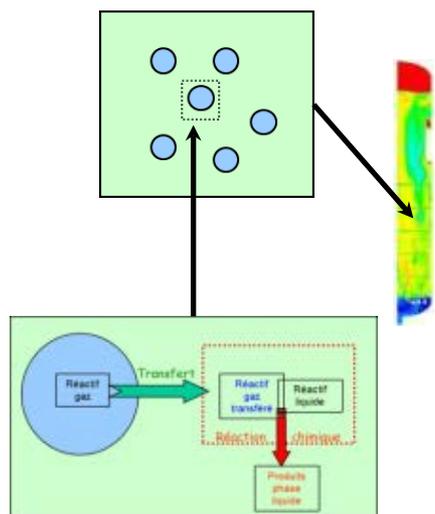
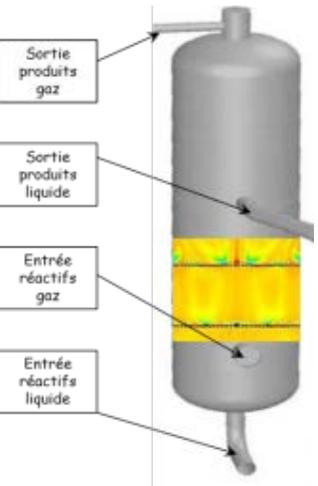
- mise en place d'**expériences spécifiques en interne ou via collaborations** pour validation des modèles (ex.: mesures de tension de surface dans un milieu réactionnel représentatif du procédé)
- **Adaptation de modèles** (ex. PCM en milieu liquides pour μ mélange)

Quelques Challenges

- Compromis Précision / temps CPU des calculs
- Echelles: passer les barrières
- Représentativité des modèles / Bases de validation expérimentales

CFD encore coûteuse: peut être utilisée pour alimenter des modèles simplifiés de génie chimique qui vont rentrer dans les boucles de process control d'usines par exemple.

Exemple de passage 3D → 1D



Modèle RANS 3D simplifié: LES inenvisageable à la date

Modèle RANS 2D complet

DTS numérique Gaz & Liquide

Description zonale

Modèle 1D



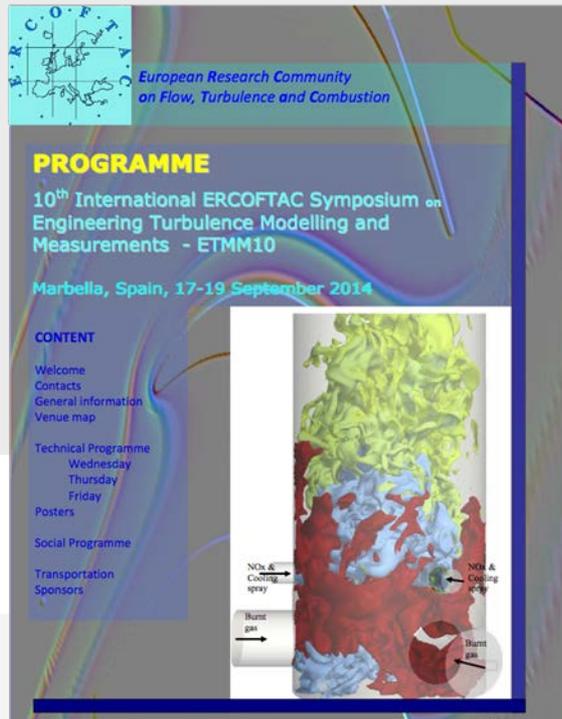
SOMMAIRE

1. Contexte / Attentes autour de la CFD
 2. Focus sur la simulation multiéchelle d'un procédé de DeNO_x SNCR
- Conclusion

SOMMAIRE

1. Contexte / Attentes autour de la CFD
2. Focus sur la simulation multiéchelle d'un procédé de DeNOx SNCR

Conclusion



Thèse: Benjamin Farcy, fin: dec. 2014

Direction: Pascale Domingo, Luc Vervisch - CORIA-CNRS
N. Perret - Solvay



Center For Turbulence Research
Summer Program 2014



Contexte & Objectifs

- Le Procédé SNCR (Selective Non Catalytic Reduction) consiste of injecter de l'urée ($\text{CO}(\text{NH}_2)_2$) ou de l'ammoniac (NH_3) dans les gaz à traiter pour réduire le NO.
- Le Procédé SNCR est moins couteux que le SCR (Selective Catalytic Reduction).
 - ✓ Le procédé SNCR à l'ammoniac est intialement décrit par Lyon (Lyon, International Journal of Chemical Kinetics 8(2): 315-318, 1976).
 - ✓ La réduction de NO par NH_3 est compétitive avec l'oxydation de NH_3 en NO (Lyon & Benn 7th Int. Symp. Combustion, pp. 601-610, 1979).
- La réduction de NO n'est efficace que dans une plage étroite $1150 \text{ K} < T < 1300 \text{ K}$.
 - ✓ La température moyenne doit être contrôlée efficacement
 - ✓ Quel impact des RMS dans le système industriel sur le rendement?

Analyse d'un procédé DeNOx SNCR



Cadre législatif sur les émissions de NOx.

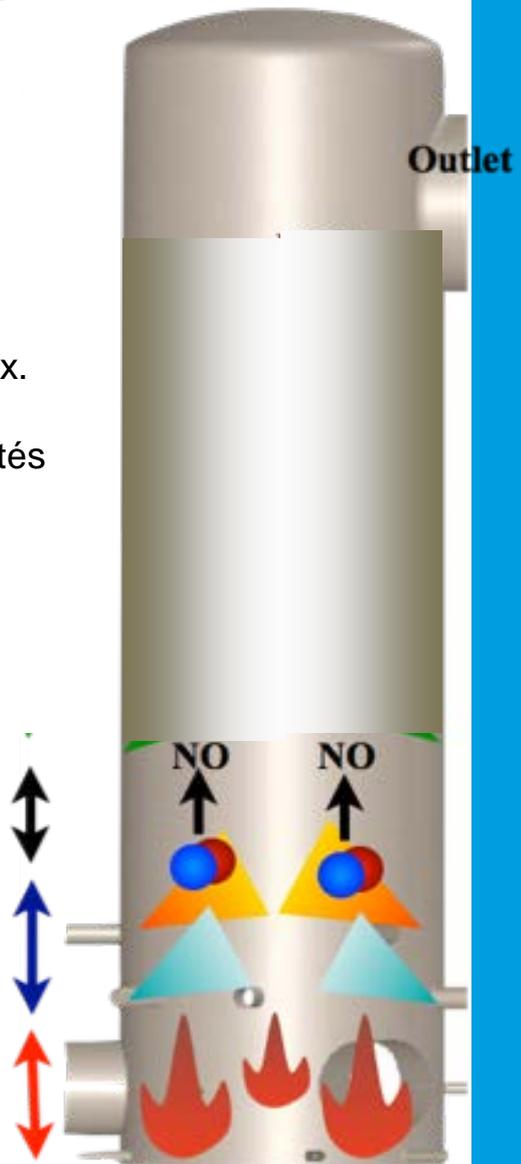
Production industrielle de grandes quantités d'effluents finaux nitrés à traiter.



NO Production

Injection zone
Water &
Effluents

Combustion
zone

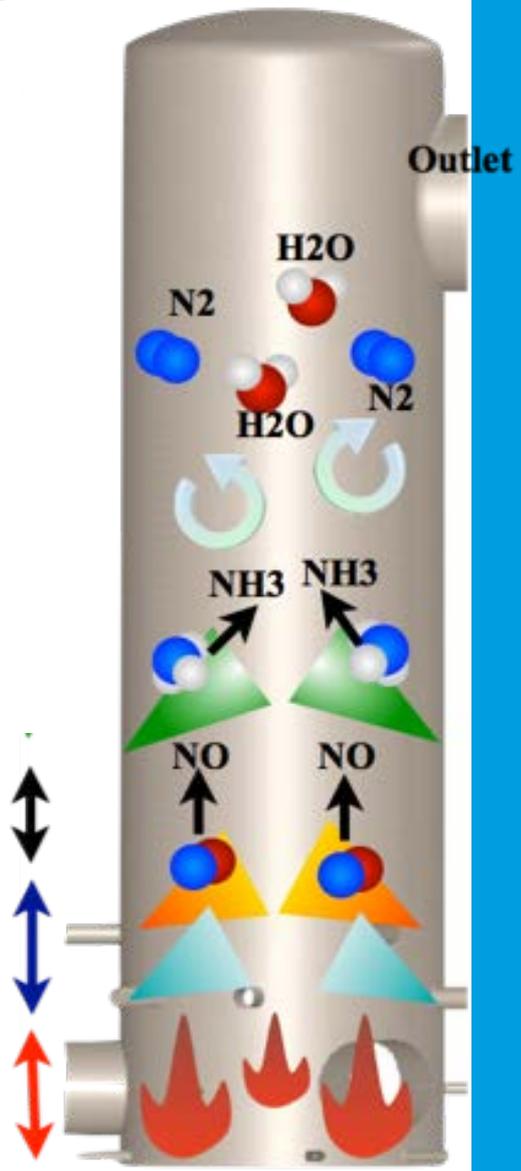


Analyse d'un procédé DeNOx SNCR



SNCR
Selective Non-Catalytic Reduction

NO Production
Injection zone
Water & Effluents
Combustion zone



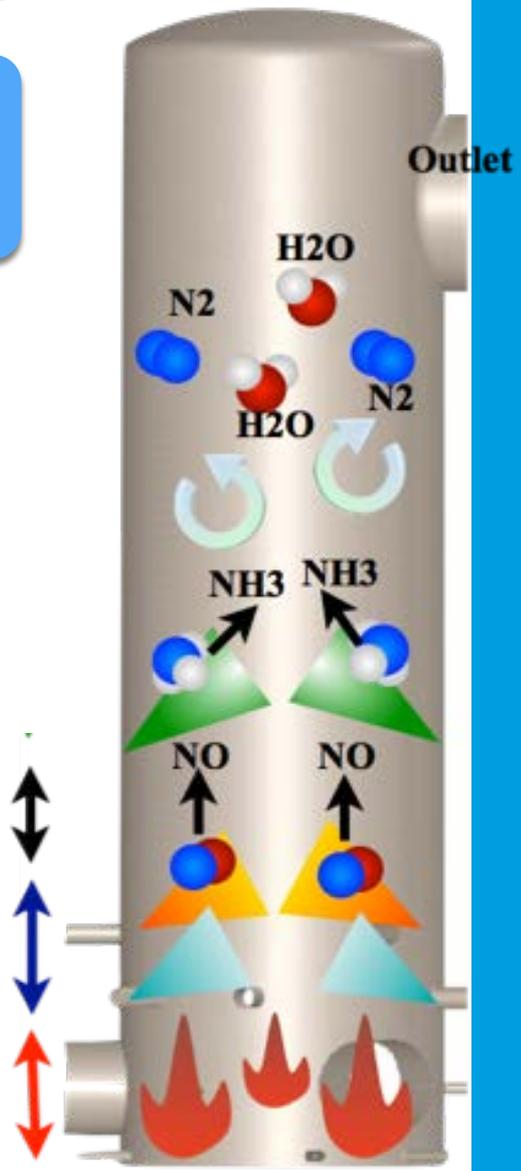
Analyse d'un procédé DeNOx SNCR

Maîtriser les sprays et les interactions chimie/turbulence



SNCR
Selective Non-Catalytic Reduction

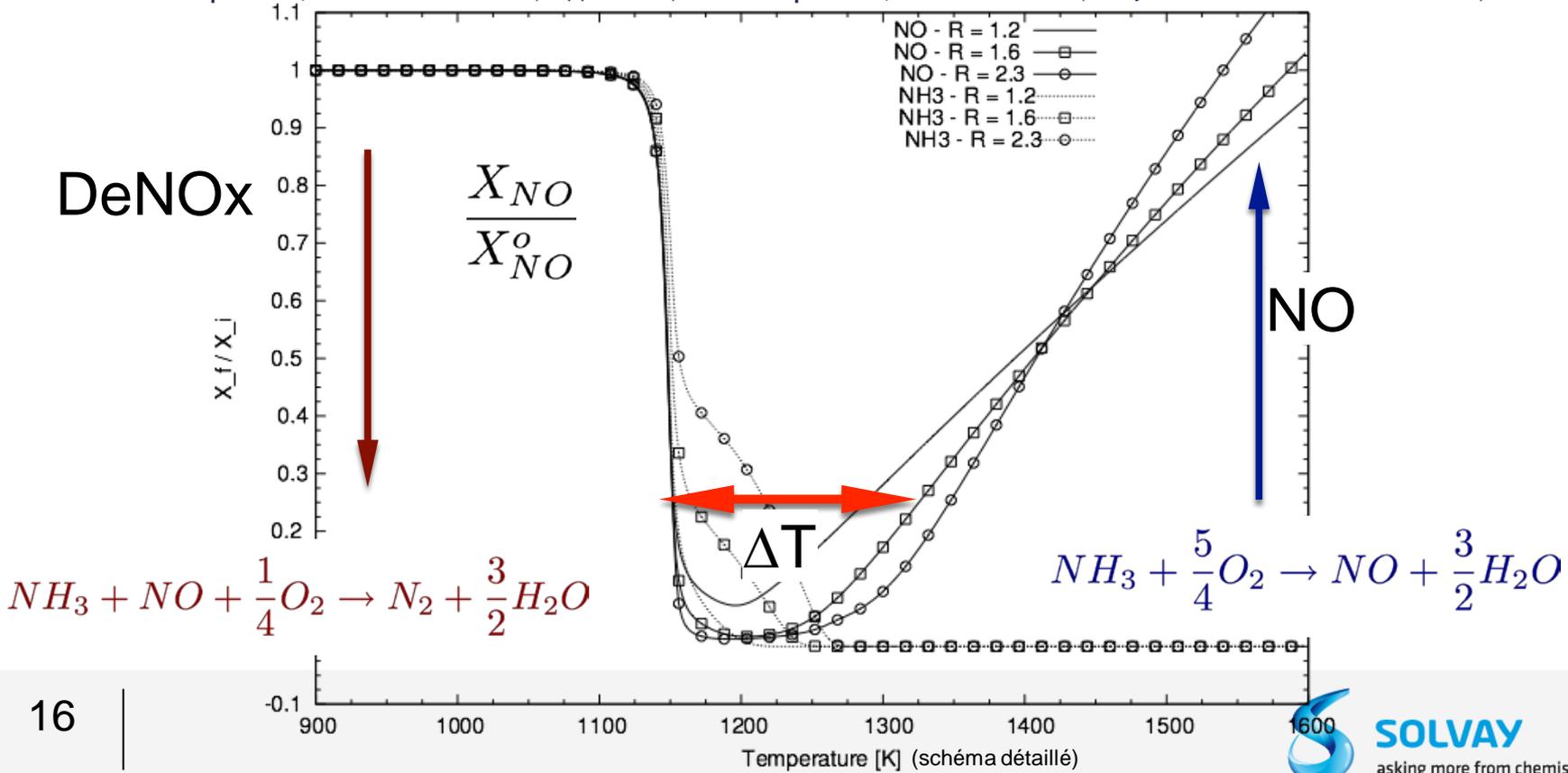
NO Production
Injection zone
Water & Effluents
Combustion zone



Analyse d'un procédé DeNOx SNCR

- Le Challenge: investiguer l'impact de la topologie et de l'importance des fluctuations de températures sur la conversion dans un four équipé de multiples injections (gaz et liquides).
- Travail directement sur l'unité industrielle (géométrie, analyses industrielles)
- ✓ Analyse préliminaire sur réacteurs piston: plages de température, temps caractéristiques (Da), réduction de schéma cinétique en vue de calculs LES:

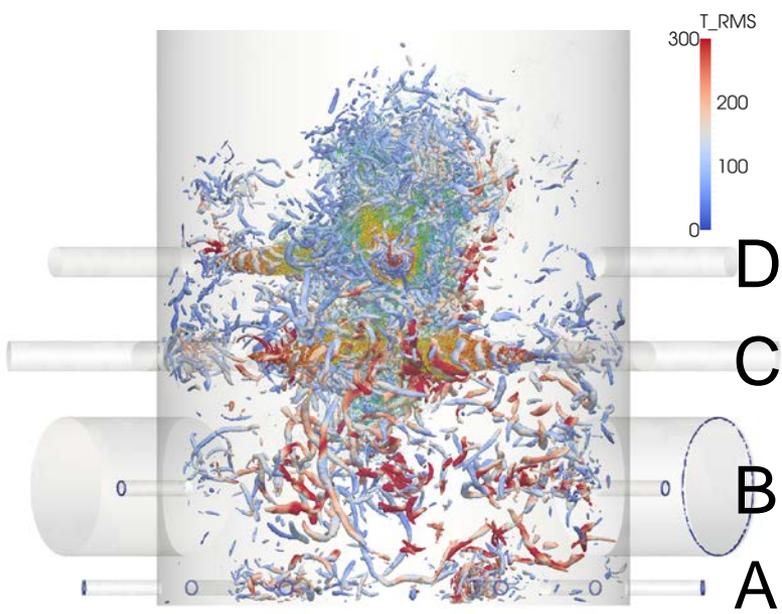
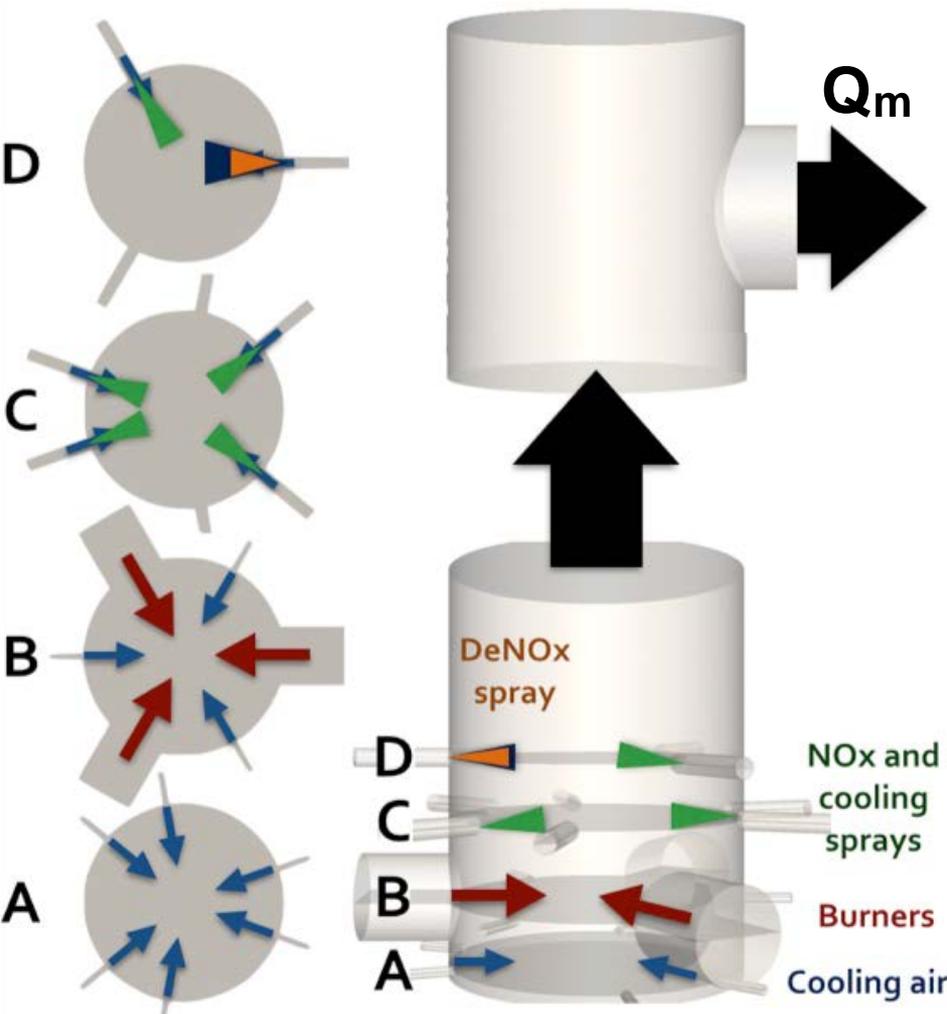
33 espèces, 207 réactions (Klippenstein) → 5 espèces, 2 réactions (Farcy et al., Fuel, 118:291-299, 2014)



Analyse d'un procédé DeNOx SNCR

Description du procédé simulé

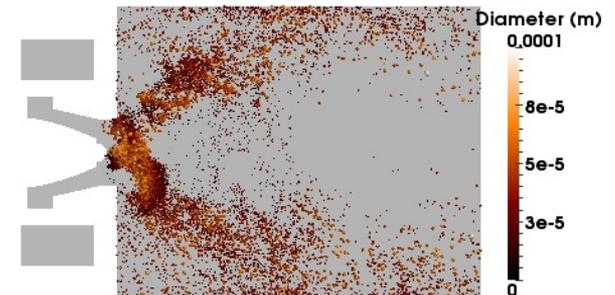
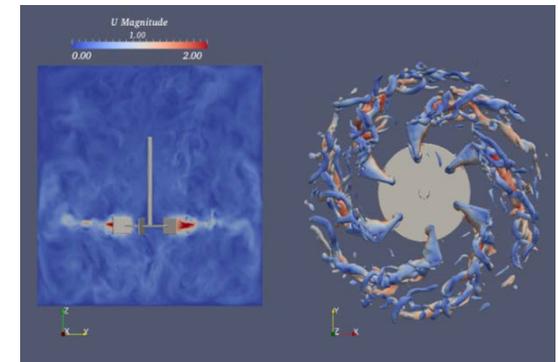
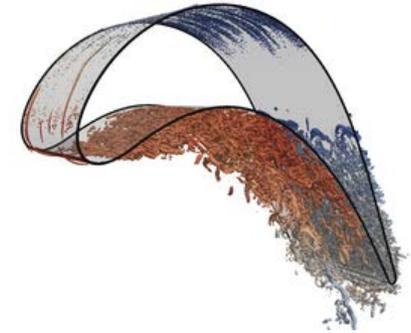
- A: Air de refroidissement: $0.1Q_m$
- B: gaz brûlés pour apport enthalpique: $0.54Q_m$
+ air de refroidissement additionnel: $0.05Q_m$
- C: Spray d'effluent: $0.2Q_m$
- D: Spray d'effluent + NH_3 : $0.11Q_m$



Iso critère Q coloré par T_{RMS}
Sprays colorés par taille de gouttes

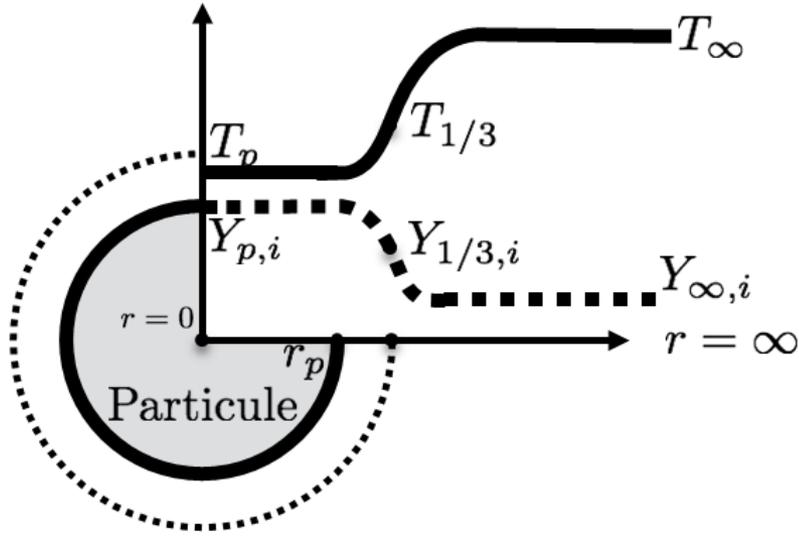
L'outil Numérique

- Solver Bas-Mach volumes finis pour maillages non structurés: YALES2 (Moureau et al. www.coria-cfd.fr).
- Schémas centrés aux nœuds pour stockage des variables et méthode de projection combiné à solveur d'équation de Poisson pour la pression pour l'avancement en temps de la conservation de la masse (Malandain et al. Comp. Physics 238: 32-47, 2013).
- Ordre 4 en temps et espace (Kraushaar 2011, PhD Thesis, CERFACS).
- Modèle sous maille: Localized dynamic Smagorinsky (Germano et al. Phys. Fluids 3(7): 1760-1765.)
- Particules lagrangiennes avec couplage two-way



Y A L E S 2

Evaporation multicomposants



$$\dot{m}_p = \sum_i^{n_{sp}} \dot{m}_{p_i}$$

$$B_{M,i} = \frac{Y_{i,surf} - Y_{i,\infty}}{1 - Y_{i,surf}}$$

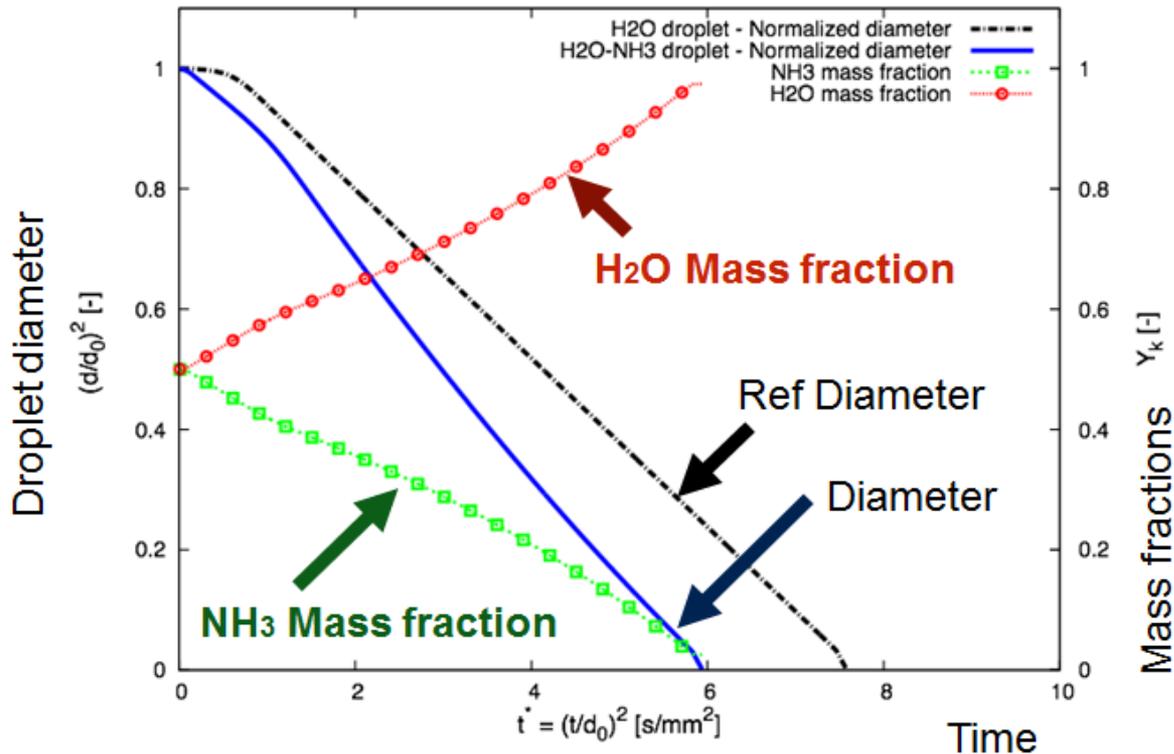
- (NH₃ et H₂O) & (espèces azotées & H₂O) ne s'évaporent pas à la même vitesse
 → besoin d'évaporation différentielle
 → données thermodynamiques tirées d'un modèle aspen interne éprouvé puis simplifié:
- Pressions partielles calculées avec les lois de Clausius Clapeyron et Raoult :

$$\dot{m}_{p_i} = -\pi d_p (\rho D_i) Sh_i \log(1 + B_{M_i})$$

$$p_{surf,i}(T) = X_{p,i} p_{ref} \exp\left(\frac{W_i L_{vi}}{R} \left(\frac{1}{T_{ebu,i}} - \frac{1}{T_p}\right)\right)$$

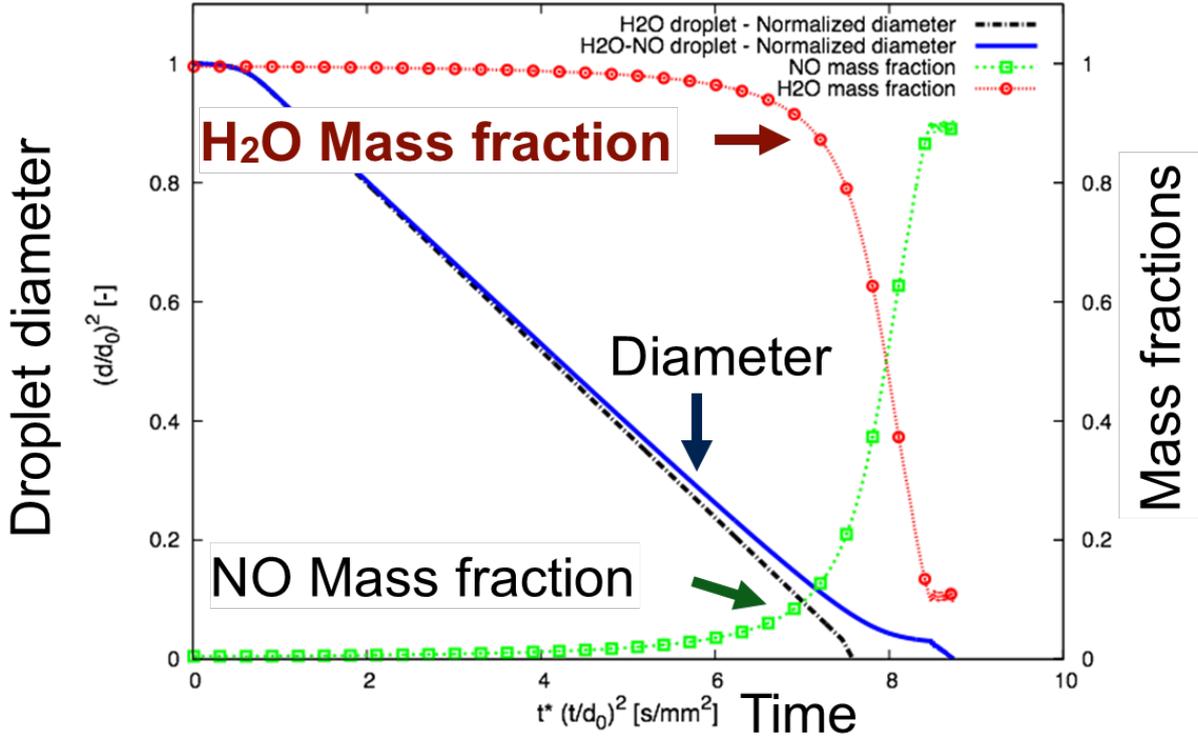
Evaporation multicomposants

- Analyse préliminaire par DNS (THI) d'évaporation multicomposant:
 - Évaporation plus rapide de NH_3 que de H_2O .
 - La concentration en H_2O augmente dans les gouttes
- Hétérogénéité de distribution de NH_3



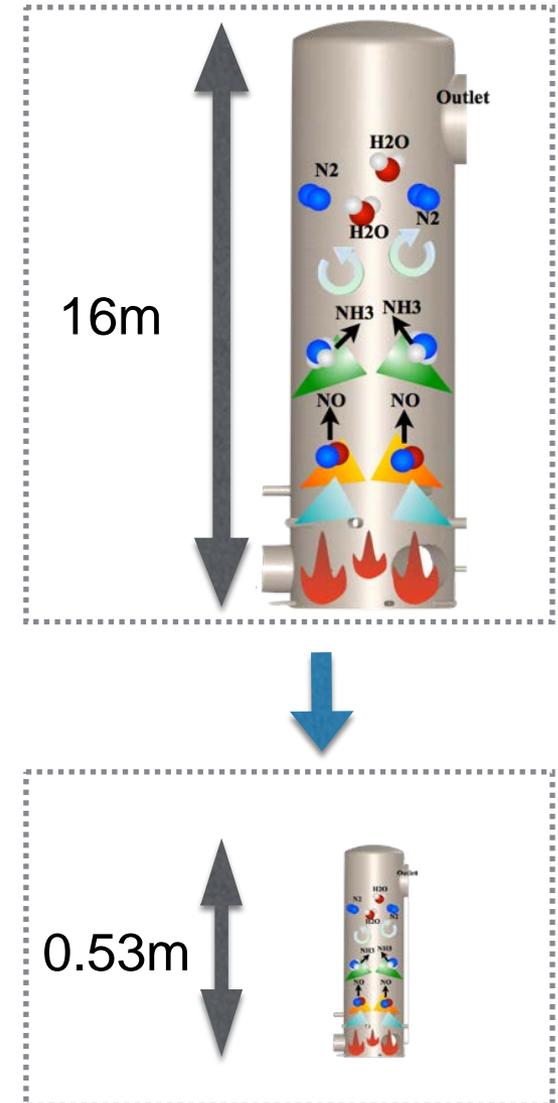
Evaporation multicomposants

- Les données industrielles indiquent que dans le spray d'effluent, H₂O s'évapore en premier, favorisant la précipitation des espèces nitrées qui sont ensuite flashées et relarguent du NO.
- La concentration en NO équivalent augmente dans le spray au cours de l'évaporation.



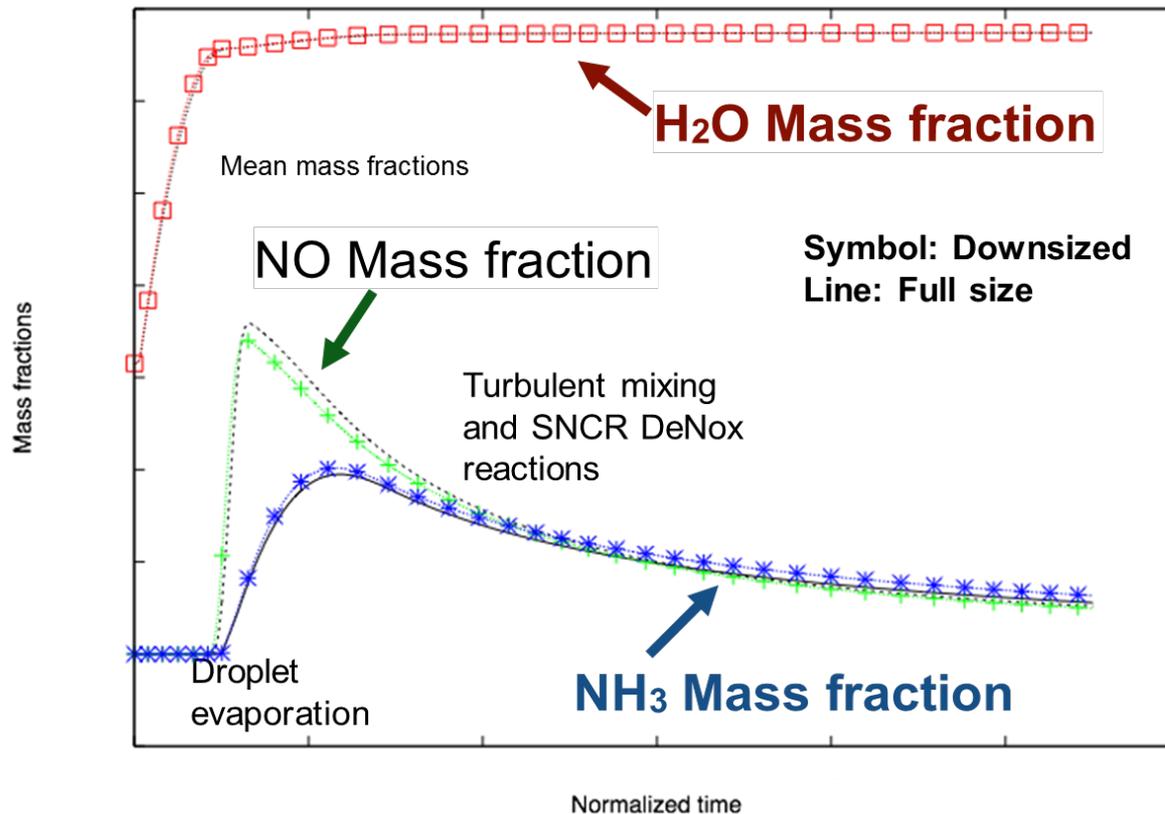
Simulation du système réel: downsizing

- Système industriel: 16m haut, diam. ~4m
→ LES finement résolue en dehors des possibilités CPU actuelles.
→ Simulation 160M cellules (VLES) est réalisée avec une taille de filtre $\Delta = 5$ mm. Déraffinement du modèle hasardeux!
- Une procédure de downsizing numérique a été établie pour simulation de taille de filtre $\Delta = 150$ μm :
 - Re réduit d'un facteur 30 (réduction de taille du système), mais vitesses moyennes conservées. On reste pleinement turbulent.
 - Cinétiques et propriétés des sprays ajustées pour conserver Damköhler + trainée & évaporation.
(Détails dans le mémoire de thèse + article, en cours de rédaction...)



THI: downsizing

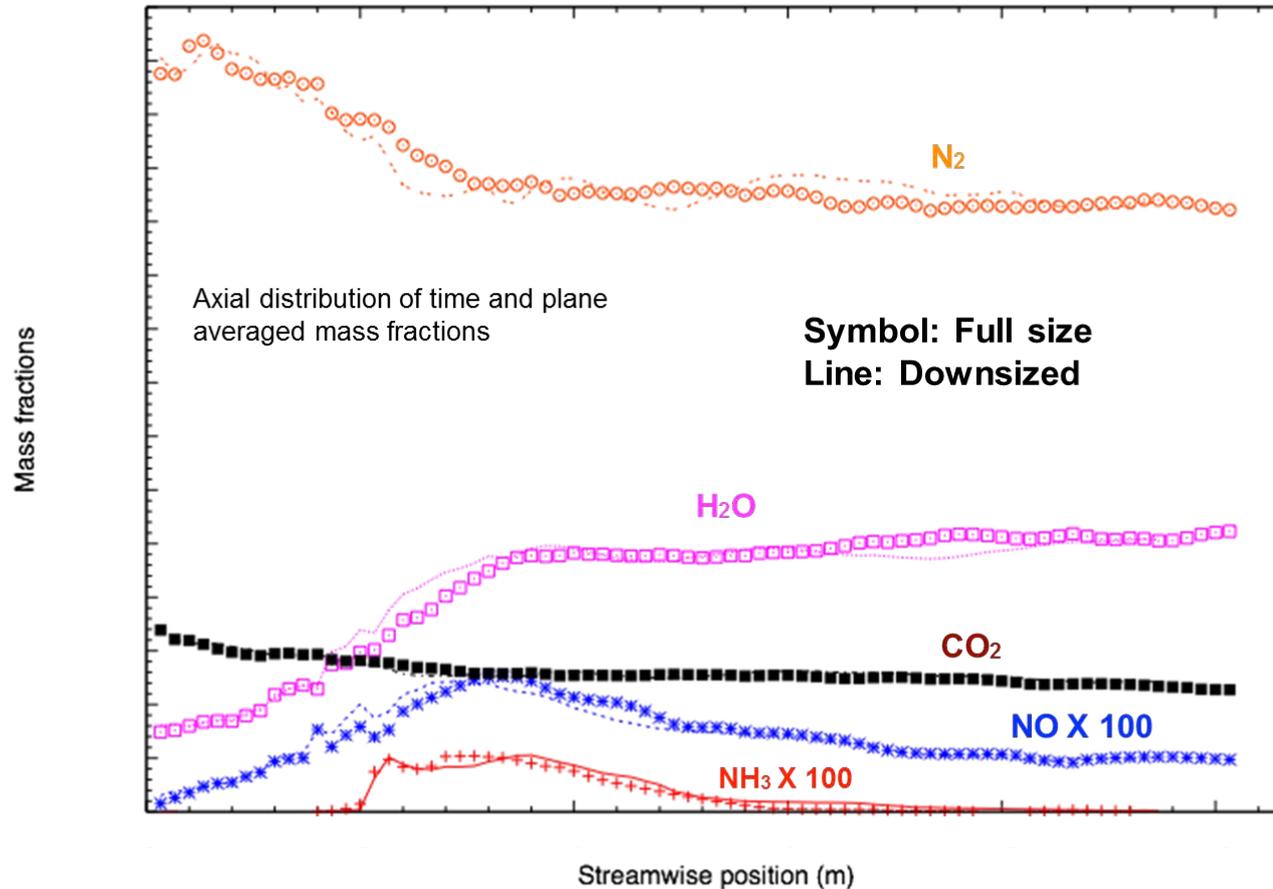
- Validation de la procédure: THI avec évaporation lagrangienne.
- L'analyse des temps caractéristiques a montré qu'il n'était pas nécessaire d'appliquer la procédure au nombre de Karlovitz → les fluctuations importantes pour l'efficacité du procédé sont à l'échelle convective



	Full	Down
Re_T	955	95.5
Δ	300 μm	50 μm
l_T	30 Δ	20 Δ
Kolmogorov	52 μm	32 μm

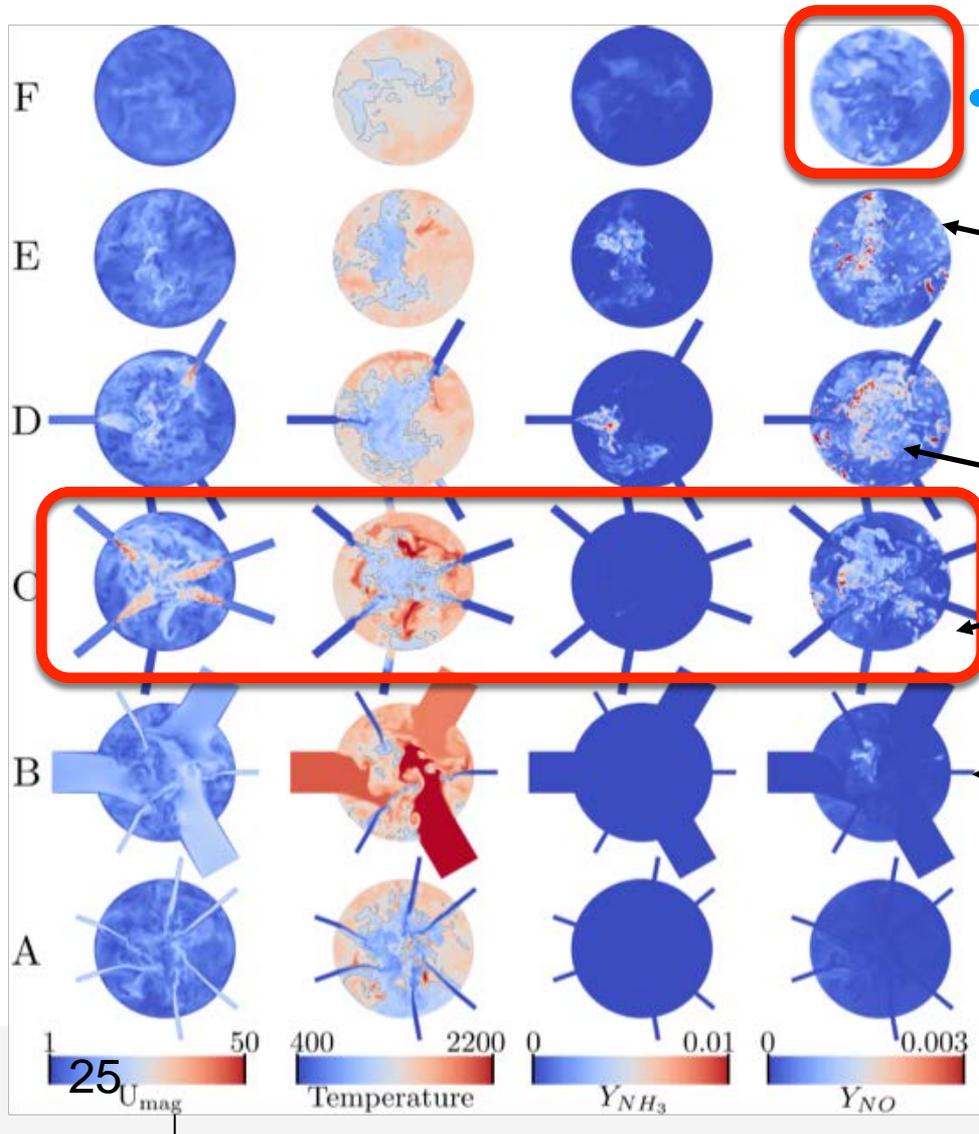
Systeme reel: downsizing

- Comparaison systeme reel / maquette numerique: accord global
- Les resultats correspondent aux mesures sur site

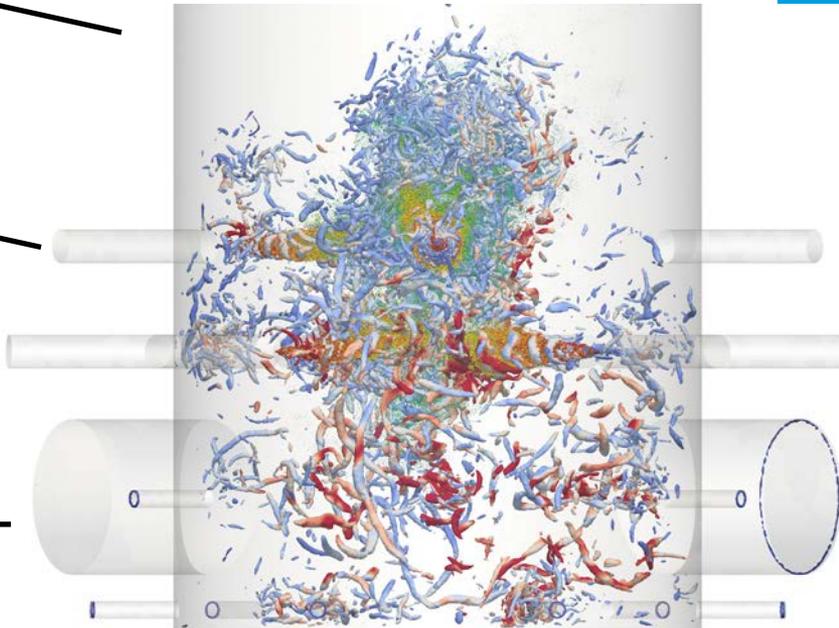


Maquette Numérique du système réel

- LES ($\Delta = 150 \mu\text{m}$)



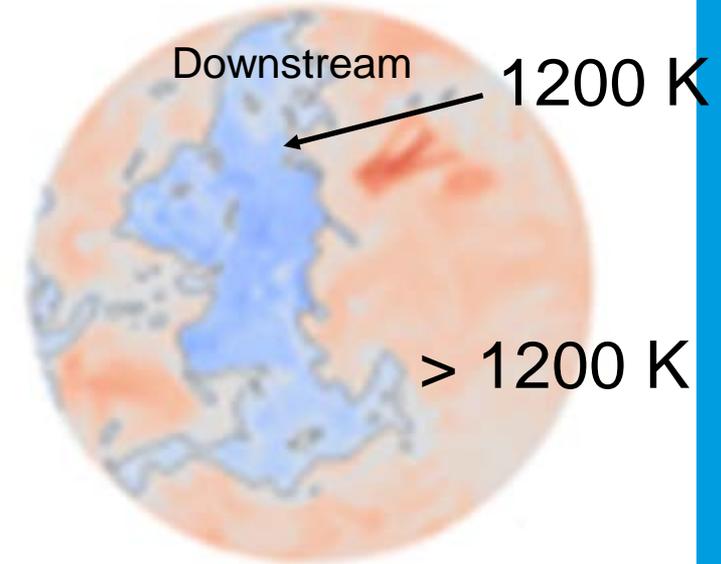
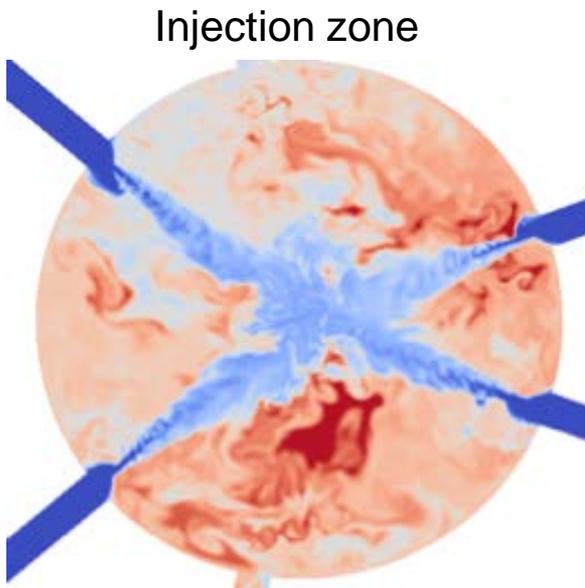
- Les fluctuations de Temperature sont trop importantes même loin à l'aval.
- Les injections ne favorisent pas une distribution homogène des scalaires.



- La LES permet une analyse détaillée du mélange et certaines faiblesses du procédé deviennent flagrantes

Maquette Numérique du système réel

- La simulation met en évidence le fait que les injections conduisent à d'importantes zones chaudes même loin dans l'aval du procédé.
- Le long temps de séjour permet une efficacité globale correcte mais non optimale,



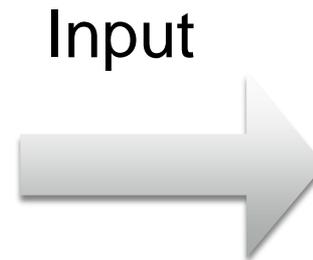
DeNOx SNCR

Modèle 1D

- L'amélioration du procédé touche au design et au process control amélioré du procédé.
- L'idée est d'écrire un modèle 1D temps réel.



LES :
Optimisation du
Design

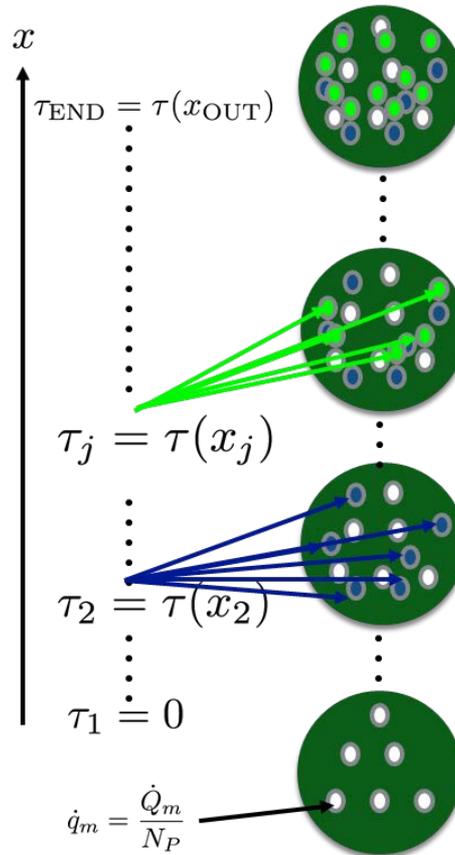
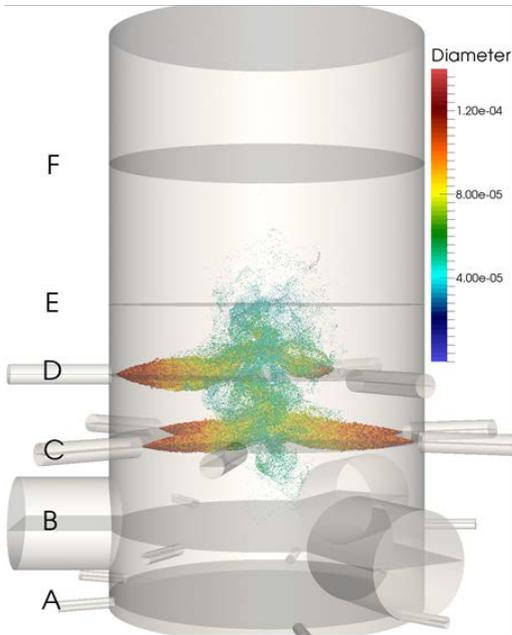


Modèle 1D:
Process Control

```
Terminal - Running
total particles @ station # 9995
NH3/NO Molar ratio = 1.4420052383211073
Bottom condition ----->>>>
Rho kg/m3 = 1.1634014465734555
RMS velocity = 15.49193384829668
Epsilon = 7950.4639594896353
Mixing time = 1.5093458773153556E-002
K = 120.00000000000000
l = 1 Temp = 303.14999389655731
NPI = 1005
Computing for flow section # = 1
Total number of particles = 1005
Starting time = 0.000000000000000
time = 0.67439997196197510
Starting x = 0.16539999842643738
time = 1.3411999940872192
```

Modèle SNCR 1D

- Les modèles 1D stochastiques sont utilisés dans le domaine de la combustion.
Han et al, Combust. Flame 119(4): 483-493 (1999) - Ihme, Combust. Flame 159: 1592-2604 (2012)
- Cette base est utilisée pour écrire le modèle, dont certaines constantes sont optimisées à partir de calculs LES.



- ✓ Ecoulement moyen décomposé en particules stochastiques qui sont injectées à chaque entrée du procédé (gaz ou liquide).
- ✓ Chaque particule transporte une fraction du débit massique total (gaz & sprays).
- ✓ Modèle k- ϵ 1D résolu en temps pour les temps de mélange.
- ✓ Les propriétés des particules évoluent en fonction de l'évaporation des sprays, du mélange et de la chimie.

→ 'exploration' du modèle en cours, la version préliminaire tourne en 5 minutes sur un smartphone.

Modèle SNCR 1D

- Temps de mélange: k - ϵ

$$\frac{d\rho^* k^*}{d\tau} = \rho^* \mathcal{P}_k - \rho^* \epsilon^*$$

$$\frac{d\rho^* \epsilon^*}{d\tau} = \rho^* \mathcal{P}_k C_{\epsilon_1} \frac{\epsilon^*}{k^*} - C_{\epsilon_2} \rho^* \frac{\epsilon^{*2}}{k^*}$$

Forçage du aux entrées

$$\mathcal{P}_k = C_k \sum_{j=1}^{N_j} \mathcal{F}_j(\tau) \left(\frac{\dot{Q}_{m_j}}{\dot{Q}_m} \right) k_j$$

Energie en entrée tirée de la LES

Temps de mélange

$$\tau_T(\tau) = C_\phi \left(\frac{k^*(\tau)}{\epsilon^*(\tau)} \right)$$

- Equations de l'évolution en temps le long de l'écoulement:

$$\frac{dY_i^p}{d\tau} = \text{MIX}_i^p(\tau_T(\tau)) + \dot{\omega}_{v_i}^p + \dot{\omega}_i$$

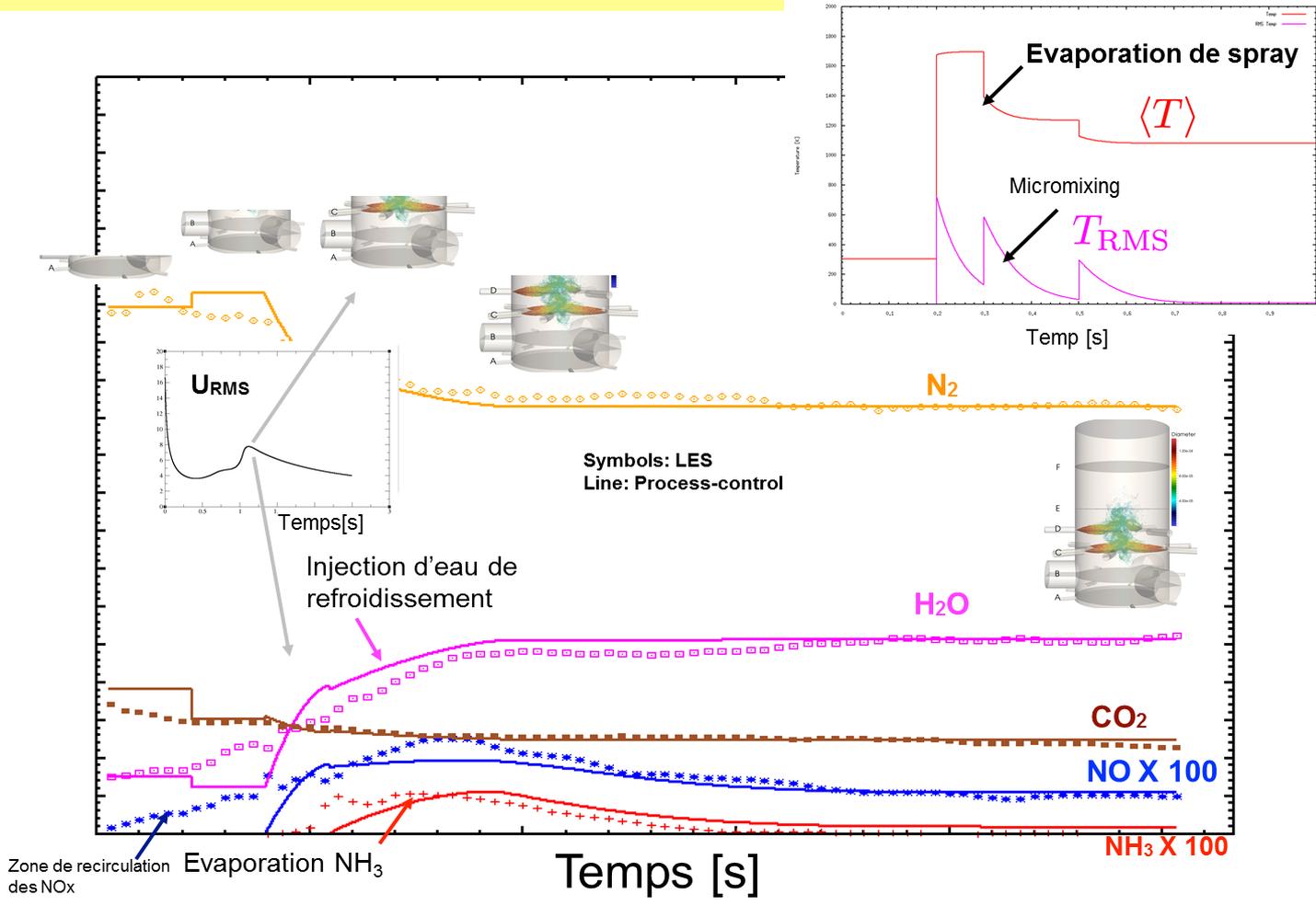
Vaporisation

$$\frac{dh_s^p}{d\tau} = \text{MIX}_{h_s}^p(\tau_T(\tau)) + \dot{\omega}_{v_{h_s}}^p + \dot{\omega}_{h_s}^p$$

Mélange (Modified Curl) Chimie

Modèle SNCR 1D

- Reproduit les tendances en particulier les grandeurs en sortie:
→ Utilisable pour du process control



Modélisation d'un procédé SNCR: résumé

- La géométrie complexe d'un procédé SNCR a été modélisée par LES avec prise en compte de spray avec évaporation et réactions chimiques optimisées.
- La procédure de downsizing proposée permet de limiter les effets liés aux tailles de filtres élevées imposées par le coût calcul. A terme, il serait possible de réduire la taille de maillage nécessaire tout en conservant une bonne description de l'écoulement.
- Un modèle 1D calibré avec la LES permet de s'affranchir de calculs de DTS coûteux et ouvre des perspectives pour le process control.

... Beaucoup reste à explorer!



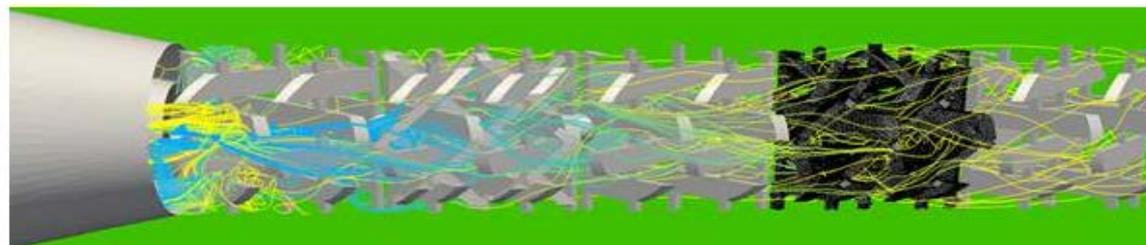
SOMMAIRE

1. Contexte / Attentes autour de la CFD
2. Focus sur la simulation multiéchelle d'un procédé de DeNOx SNCR

Conclusion

- La CFD permet de traiter des écoulements au sein de **géométries industrielles complexes**
- La CFD est un **solveur d'équations**: les limitations sont liées à la complexité des modèles à mettre en œuvre (sait on les écrire? les résoudre?), et à l'échelle à laquelle on souhaite observer les phénomènes (ex: μ mélange à grand Sc / Re).
- Les **expertises** amont (analyse du problème) et aval (analyse physique des résultats) sont tout aussi essentielles que la performance des outils mis en œuvre.
 - Pas de solution générique: **Solution au cas par cas** car les procédés étudiés sont différents: complexité, délai & niveau de réponse attendu
 - Même les **données issues de systèmes industriels** sont riches d'informations

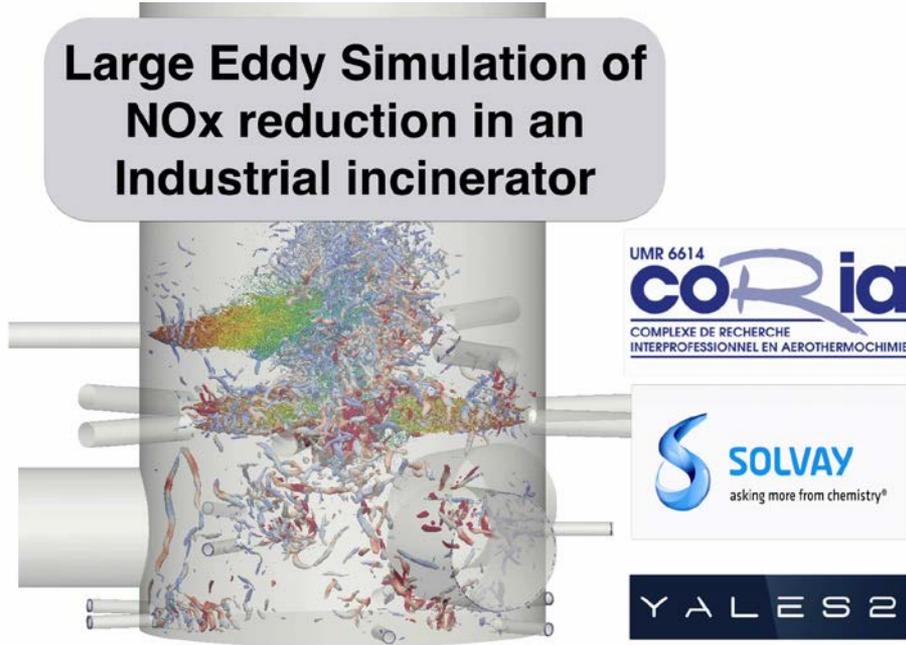
... **Beaucoup reste à explorer!**



Simulation RANS d'un mélangeur SMX+: validation de δP et Nu , stage Solvay/ENSEEIH, 2014



Large Eddy Simulation of NOx reduction in an Industrial incinerator



www.solvay.com



SOLVAY

asking more from chemistry®