Simulation Numérique de Points Critiques et d'Écoulements Étirés pour les Mélanges d'Éthane et d'Azote

## 

 $^1{\rm CMAP},$ École Polytechnique

 $^2 \rm CORIA,$  Ins<br/>a Rouen







# CONTEXTE ET OBJECTIFS

#### Contexte



Bulles de champagne

#### OBJECTIFS

- Obtenir les états critiques.
- Modéliser les écoulements étirés.



#### Mélange eau-huile

#### Définition d'une thermodynamique

La connaissance de e, p et s fonctions  $C^2$  de  $\zeta = (T, \nu, y)$  sur  $\mathcal{O}_{\zeta}$  vérifiant  $(T_1)$ - $(T_4)$  est une thermodynamique où  $y = (y_1, \ldots, y_n)^t$  et n le nombre d'espèces.

$$\begin{array}{ll} (\mathsf{T}_1) & e \mbox{ et } s \mbox{ 1-homogène et } p \mbox{ 0-homogène pour } (\nu, y). \\ (\mathsf{T}_2) & \mbox{ Relation de Gibbs où } g_k \stackrel{\mathrm{def}}{=} \partial_{y_k} e - \mathcal{T} \partial_{y_k} s, \\ & \mbox{ d} e = \mathcal{T} \mathrm{d} s - p \mathrm{d} \nu + \sum_{k=1}^n g_k \mathrm{d} y_k \end{array}$$

 $\begin{array}{ll} (\mathsf{T}_3) & \partial_{\mathcal{T}} e(\zeta) > 0 \mbox{ et croissance en température de } \mathcal{O}_{\zeta}. \\ (\mathsf{T}_4) & \mathrm{Croissance en } \nu \mbox{ de } \mathcal{O}_{\zeta} \end{array}$ 

$$\lim_{\nu \to \infty} \left( e - e^{\mathrm{gp}} \right) = 0, \ \lim_{\nu \to \infty} \left( s - s^{\mathrm{gp}} \right) = 0 \ \mathrm{et} \lim_{\nu \to \infty} \nu \left( p - p^{\mathrm{gp}} \right) = 0.$$

Les fonctions  $e^{gp}$ ,  $s^{gp}$  et  $p^{gp}$  sont connues.

<sup>.</sup> Giovangigli, V. and Matuszewski, L., Physica D, 2012.

LOI D'ÉTAT SRK (SOAVE-REDLICH-KWONG)

$$p(\zeta) = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{y_i}{M_i}\right) \frac{RT}{\nu - b(y)} - \frac{a(T, y)}{\nu(\nu + b(y))},$$
$$a(T, y) = \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{n} y_i y_j \frac{\alpha_i(T)\alpha_j(T)}{\alpha_j(T)}, \quad b(y) = \sum_{i=1}^{n} y_i \frac{b_i}{b_i},$$

et les  $\alpha_i$  et  $b_i$  sont construits à partir des états critiques et des facteurs acentriques des espèces.

FONCTION DE GIBBS MASSIQUE

$$g\stackrel{\rm def}{=} e - Ts + p\nu,$$

$$g^{\text{SRK}} = \sum_{i=1}^{n} y_i g_i^{\text{gp}} + \frac{y_i RT}{M_i} \ln \left( \frac{y_i RT}{M_i (\nu - b) \rho^{\text{st}}} \right) \\ + \frac{y_i RTb}{M_i (\nu - b)} - \frac{a}{b} \ln \left( 1 + \frac{b}{\nu} \right) - \frac{a}{\nu + b}.$$

# Motivation (I)



Domaine d'instabilité à T = 200 K pour les mélanges d'éthane et d'azote.

Si  $p > p^{\text{crit}}$ , le système est forcément stable.

# MOTIVATION (II)



Classification des états critiques des mélanges binaires<sup>1</sup>

Prausnitz, John M and Lichtenthaler, Rudiger N and De Azevedo, Edmundo Gomes, Molecular thermodynamics of fluid-phase equilibria, 1998, (third edition), p.679.

<sup>1.</sup> Van Konynenburg, PH and Scott, RL, Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 1980.

FONCTIONS DE GIBBS VOLUMIQUE

$$\mathcal{G} \stackrel{\text{def}}{=} \rho g = \rho \left( e - Ts + p\nu \right).$$

#### Définition

On considère un mélange binaire. Soit  $\mathcal{G}$  la fonction de Gibbs volumique et x la fraction molaire d'une espèce du mélange. Les états critiques vérifient le système suivant

$$\begin{cases} \partial_x^2 \mathcal{G} \Big|_{\rho, T} (\rho^{\text{crit}}, T^{\text{crit}}, x^{\text{crit}}) = 0, \\ \partial_x^3 \mathcal{G} \Big|_{\rho, T} (\rho^{\text{crit}}, T^{\text{crit}}, x^{\text{crit}}) = 0. \end{cases}$$

Il existe une caractérisation pour les mélanges n-aire<sup>1</sup>.

<sup>1.</sup> Peng, Ding-yu and Robinson, Donald B, AIChE Journal, 1977.

### DÉRIVATION ANALYTIQUE DU SYSTÈME

VARIABLES THERMODYNAMIQUES

$$\begin{aligned} \zeta &= (T, \nu, y_1, y_2), \\ \pi &= (T, p, x_1, x_2). \end{aligned}$$

On sait calculer  $\partial_{\zeta} \mathcal{G}$  et non  $\partial_{\pi} \mathcal{G}$ . ÉCRITURE DU SYSTÈME

- 1- Calcul de  $\partial_{\zeta} \mathcal{G}, \ \partial_{\zeta}^2 \mathcal{G}, \ \partial_{\zeta}^3 \mathcal{G},$
- 2- Calcul de  $\partial_{\pi} \mathcal{G} = \partial_{\zeta} \mathcal{G} \partial_{\pi} \zeta$

#### Difficulté

La dérivation analytique du système est complexe

## CALCUL FORMEL : SYMPY

$$\begin{aligned} \frac{\sin p(1)ty(diffx(diffx(diffx(diffx(diffx(diffx(m,p,x,nu),p,x,nu),p,x,nu)))}{\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)} \\ - \frac{\frac{\partial}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}p(x,v)}{\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)} + \frac{\frac{3}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} + \frac{\frac{3}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}p(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} - \frac{\frac{3}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial^2}{\partial x^2}p(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^3} \\ - \frac{\frac{3}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^3} - \frac{\frac{6}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^3} + \frac{\frac{9}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial^2}{\partial x^2}p(x,v)\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^4} \\ + \frac{\frac{3}{\partial v}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}p(x,v)\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^3}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^4} - \frac{\frac{3}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial^2}{\partial x^2}p(x,v)\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^5} + \frac{3}{\frac{\partial^2}{\partial x^2}}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}p(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}p(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{\frac{6}{\partial v}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} + \frac{3}{\frac{\partial^2}{\partial x^2}}g_m(x,v)\frac{\partial^2}{\partial x^2}p(x,v)\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)^3}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} + \frac{3}{\frac{\partial^2}{\partial x^2}}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}p(x,v)\frac{\partial}{\partial x^2}}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{\frac{6}{\partial v}g_m(x,v)\frac{\partial}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} + \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ + \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} + \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} + \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} + \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} + \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial v}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} \\ - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)}{\left(\frac{\partial v}{\partial x}p(x,v)\right)^2} \\ - \frac{3}{\frac{\partial v}{\partial x}g_m(x,v)} \\ - \frac{3}{\frac$$

#### $\operatorname{Problème}$

Résoudre un système d'équations non linéaires de la forme

$$G(v) = G(\boldsymbol{u}, \boldsymbol{\lambda}) = 0,$$

avec  $\mathbf{v} = (\mathbf{u}, \lambda) \in \mathbb{R}^{n+1}, \ \mathbf{u} \in \mathbb{R}^n \text{ et } \lambda \text{ un réel.}$ IDÉE DE LA CONTINUATION

Paramétriser la solution  $(u(s), \lambda(s))$  par l'abscisse curviligne s.

$$\begin{cases} G\left(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{s}),\lambda(\boldsymbol{s})\right) &= 0 \quad (\text{Équation originelle}), \\ N\left(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{s}),\lambda(\boldsymbol{s}),\boldsymbol{s}\right) &= 0 \quad (\text{Équation } \boldsymbol{s} = \text{longueur de l'arc courbe}), \\ \left(\boldsymbol{u}(0),\lambda(0)\right) &= \left(\boldsymbol{u}_0,\lambda_0\right). \end{cases}$$

<sup>.</sup> Keller, Herbert B, Application of bifurcation theory, (1977)

## CONTINUATION : ÉTATS CRITIQUES

LES INCONNUES

$$\boldsymbol{u} = (T, y_1, y_2), \quad \boldsymbol{\lambda} = \boldsymbol{\nu}$$

Systèmes d'équations

$$\begin{cases} y_1 + y_2 = 1, \\ \partial_{x_1}^2 \mathcal{G}|_{\rho, T} = 0, \\ \partial_{x_1}^3 \mathcal{G}|_{\rho, T} = 0, \\ \rho = \rho^{\mathrm{SRK}}(T, \nu, y_1, y_2). \end{cases}$$

#### $\operatorname{Sympy}$

Calcul de  $\partial_{x_1}^2 \mathcal{G}|_{p,T}$ ,  $\partial_{x_1}^3 \mathcal{G}|_{T,p}$ .

ÉTATS CRITIQUES DES MÉLANGES ÉTHANE AZOTE



1. Wisotzki, KD and Schneider, GM, Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie (1985)

2. Stryjek, Roman, Fluid phase equilibria (1993)

3. Ellington, R.T., Eakin, EKE., Parent, J.D., Gami, D.C. and Bloomer, O.T, Thermodynamic and Transport Properties of Gases Liquid and Solids ASME (1959)

# Points critiques des mélanges éthane azote en 3D (I)



# Points critiques des mélanges éthane azote en 3D (II)



Rencontre de deux fluides en l'origine.



Illustration des écoulements étirés <sup>1</sup>

<sup>1.</sup> Gaillard, Pierre, Interfaces diffuses et flammes transcritiques LOX/H2, thèse.

# LES ÉQUATIONS BAS MACH D'UN FLUIDE (I)

$$\begin{cases} \partial_t \rho + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0, \\ \partial_t \rho_i + \nabla \cdot (\rho_i \mathbf{v}) = -\nabla \cdot \mathcal{F}_i, \\ \partial_t (\rho \mathbf{v}) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} \otimes \mathbf{v}) = -\nabla \widetilde{\rho} - \nabla \cdot \mathcal{P}^{\text{vis}}, \\ \partial_t (\rho e) + \nabla \cdot (\rho (e + \frac{p}{\rho}) \mathbf{v}) = -\nabla \cdot (\mathcal{Q}). \end{cases}$$
$$p = p_u + \widetilde{\rho}, \quad \frac{\widetilde{\rho}}{p} \sim \text{Ma}^2$$

#### Inconnues du système

- $\rho$ : masse volumique,
- $\rho_i$  : masse volumique de la ième espèce,
- v : vitesse,
- e: énergie interne massique.

# Les équations Bas Mach d'un fluide (II)

$$\begin{cases} \mathcal{P} = p\mathbf{I} - \eta \left( \nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^t - \frac{2}{3} \nabla \cdot \mathbf{v} \mathbf{I} \right) - \eta' \nabla \cdot \mathbf{v} \mathbf{I}, \\ = \mathcal{P}^{\text{vis}} \\ \mathcal{F}_i = -\sum_{j \in \mathcal{D}^e} \rho y_i D_{ij} \mathbf{d}_j, \\ \mathcal{Q} = \sum_{i \in \mathcal{D}^e} h_i \mathcal{F}_i - \lambda \nabla T. \end{cases}$$

TENSEUR DE PRESSION

 $\eta,~\eta'~$ : viscosité de cisaillement et viscosité volumique,

Flux de diffusion de la ième espèce

- $d_j$ : force d'orientation de diffusion,
- $D_{ij}$ : coefficients de la matrice de diffusion,

FLUX DE CHALEUR

$$h_i = \partial_{y_i} h|_{T,p},$$
  
 $\lambda$  : conductivité thermique.

## STRUCTURE DE LA SOLUTION

On cherche une solution en 2-D de la forme suivante

$$egin{array}{rcl} 
ho&=
ho(t,y),\ T&=T(t,y),\ y_k&=y_k(t,y),\ v&=v(t,y), \end{array}$$

$$u = \frac{\alpha}{\alpha} x \widetilde{u}(t, y).$$



On réinjecte cette solution dans le système Bas Mach.

## Système Final

#### LE SYSTÈME STATIONNAIRE

$$\begin{cases} \rho \alpha \widetilde{u} + d_{y}(\rho v) &= 0, \\ \rho v d_{y} \widetilde{u} &= d_{y} \left( \eta d_{y} \widetilde{u} \right) + \alpha \left( \rho^{d} - \rho \widetilde{u}^{2} \right), \\ \rho v d_{y} y_{k} &= -d_{y} \left( \rho y_{k} V_{k} \right), \quad k \in \llbracket 1, n \rrbracket, \\ \rho v c_{\rho} d_{y} T &= d_{y} \left( \lambda d_{y} T \right) - \left( \sum_{k=1}^{n} \rho y_{k} V_{k} c_{\rho k} \right) d_{y} T. \end{cases}$$

#### LES CONDITIONS AUX LIMITES

On fixe  $\mathcal{T}^{g}$ ,  $\mathcal{T}^{d}$ ,  $y_{k}^{g}$ ,  $y_{k}^{d}$ ,  $\alpha$  et  $p_{u}$ . On a sur les vitesses v(t, 0) = 0,  $\widetilde{u}^{d} = 1$  et  $\widetilde{u}^{g} = \sqrt{\frac{\rho^{d}}{\rho^{g}}}$ .

# DISCRÉTISATION DU SYSTÈME

#### DISCRÉTISATION DU SYSTÈME

- Discrétisation par différences finies.
- Stencil à trois points.

Système stationnaire discrétisé

$$F(X) = 0$$

avec 
$$X \stackrel{\text{def}}{=} (X_i)_{i \in I}$$
 et  $X_i = (\rho_i, \rho_i \mathbf{v}_i, T_i).$ 

Une méthode de Newton modifiée

$$J(X^k)\left(X^{k+1}-X^k\right)=-\lambda_k F(X^k),$$

où

- $\lambda_k$  est un paramètre d'amortissement ,
- J est calculé de manière approchée.

# Résolution du système discrétisé (I)



#### ${ m Algorithme}$

1- Résolution pseudo-instationnaire avec la méthode de Newton,

$$D\frac{X^{n+1}-X^n}{\tau}=F(X^{n+1}).$$

On a  $X^0, \ldots, X^{n_{ps}}$ .

2- Résolution du système stationnaire discrétisé,

$$F(X)=0.$$

On a  $X^{n_{ps}}, \ldots, X^{sol}$ 

# Résolution du système discrétisé (II)



SUITE ALGORITHME

3- Adaptation du maillage

$$\begin{cases} \int_{y_i}^{y_{i+1}} |\partial_y X_l| \, \mathrm{d} y \leq \varepsilon_1, \\ \int_{y_i}^{y_{i+1}} |\partial_y^2 X_l| \, \mathrm{d} y \leq \varepsilon_2. \end{cases}$$

Rajout d'un point milieu entre  $y_i$  et  $y_{i+1}$ .



# MÉLANGE ÉTHANE AZOTE (I)

$$\begin{split} T^{\rm g} &= T^{\rm d} = 300~{\rm K},\, y^{\rm g}_{C_2H_6} = 1,\, y^{\rm g}_{N_2} = 0,\, y^{\rm d}_{C_2H_6} = 0,\, y^{\rm d}_{azote} = 1 \ , \\ \alpha &= 10^2~{\rm et}~p_u = 100~{\rm Atm}. \end{split}$$



Comparaison masse volumique  $\rho$  haute et basse pression

# Mélange Éthane Azote (II)

$$\begin{split} T^{\rm g} &= T^{\rm d} = 300~{\rm K},\, y^{\rm g}_{C_2H_6} = 1,\, y^{\rm g}_{N_2} = 0,\, y^{\rm d}_{C_2H_6} = 0,\, y^{\rm d}_{azote} = 1 \ ,\\ \alpha &= 10^2~{\rm et}~p_u = 100~{\rm Atm}. \end{split}$$



Comparaison température  ${\mathcal T}$  haute et basse pression

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

# CONCLUSION

- I- Simuler les états critiques des mélanges binaires.
- II- Simuler les écoulements étirés en basse et haute pression.

# PERSPECTIVES

- I- Simulation des écoulements de fluides avec des interfaces diffuses.
- II- Obtenir une discrétisation du système de Navier-Stokes-Korteweg (NSK).
- III- Discrétisation du système NSK par le solveur SitCom du Coria.

# Merci de votre attention!

## Pression de vapeur saturante de l'éthane



### Pression de vapeur saturante de l'éthane



#### Discrétisation des termes d'ordre $2\,$

$$d_{y}\eta (d_{y}\widetilde{u}) \to \frac{1}{x_{i+1/2} - x_{i-1/2}} \left( \eta_{i+1/2} d_{y}\widetilde{u}(i+1/2) - \eta_{i-1/2} d_{y}\widetilde{u}(i-1/2) \right),$$

$$\begin{cases} \eta_{i+1/2} = \frac{\eta_{i+1} + \eta_{i}}{2}, \\ d_{y}\widetilde{u}(i+1/2) = \frac{(\widetilde{u}_{i+1} - \widetilde{u}_{i})}{x_{i+1} - x_{i}}. \end{cases}$$

Une méthode de Newton modifiée

$$J(X^k)\left(X^{k+1}-X^k\right)=-\lambda_k F(X^k),$$

où  $\lambda_k$  est un paramètre d'amortissement<sup>1</sup>. CALCUL DU JACOBIEN Le jacobien de F est approximé par

$$J(X)\delta Z = F(X + \delta Z) - F(X).$$

Structure du schéma

- Stencil à trois points.
- Ordre de convergence reste super-linéaire mais inférieur à 2 (Condition de Dennis-Morré).

<sup>1.</sup> Deuflhard, Peter, Numerische Mathematik, (1974).

# Mélange Éthane Azote (III)

$$\begin{split} T^{\rm g} &= T^{\rm d} = 300~{\rm K},\, y^{\rm g}_{C_2 H_6} = 1,\, y^{\rm g}_{N_2} = 0,\, y^{\rm d}_{C_2 H_6} = 0,\, y^{\rm d}_{azote} = 1 \ , \\ \alpha &= 10^2~{\rm et}~ p_u = 100~{\rm Atm}. \end{split}$$



Comparaison vites se tangentielle v haute et basse pression

# MÉLANGE ÉTHANE AZOTE (IV)

$$\begin{split} T^{\rm g} &= T^{\rm d} = 300~{\rm K},\, y^{\rm g}_{C_2H_6} = 1,\, y^{\rm g}_{N_2} = 0,\, y^{\rm d}_{C_2H_6} = 0,\, y^{\rm d}_{azote} = 1 \ , \\ \alpha &= 10^2~{\rm et}~p_u = 100~{\rm Atm}. \end{split}$$



Comparaison fraction molaire de l'éthane  $X_{C_2H_6}$  haute et basse

## FORCE D'ORIENTATION DE DIFFUSION

$$\boldsymbol{d}_j = x_j \nabla(\mu_j)|_{\mathcal{T}},$$

. .

avec

$$\mu_j \stackrel{\text{def}}{=} \frac{M_j g_j}{RT},$$
$$d\mu_j = \frac{M_j \nu_j}{RT} dp + \sum_i \partial_{x_i} \mu_j dx_i - \frac{M_j h_j}{RT^2} dT.$$