

# Fusion d'une solution d'urée dans une cavité parallélépipédique

## Melting of urea solution in parallelepipedic tank

Zejun HU<sup>1</sup>, Arnaud GRADOS<sup>1</sup>, Dominique GOBIN<sup>2</sup>, Laurent ROYON<sup>3\*</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Matière et Système Complexe, 10 rue A. Domon et L. Duquet 75013 Paris.

<sup>2</sup>Laboratoire EM2C, Ecole Centralesupelec, Bat. Eiffel, 8-10 rue Joliot Curie, 91110 Gif sur Yvette.

<sup>3</sup>Institut Laboratoire Interdisciplinaire des Energies de Demain, 10 rue A. Domon et L. Duquet, 75013 Paris.

\* (auteur correspondant : [laurent.royon@univ-paris-diderot.fr](mailto:laurent.royon@univ-paris-diderot.fr))

**Résumé** – Une étude expérimentale et numérique est développée pour suivre la fusion d'une solution d'urée placée dans un réservoir parallélépipédique. Le processus est initié par des résistances chauffantes positionnées sur les parois latérales ou horizontales. Les expérimentations avec chauffage par les parois latérales sont utilisées pour valider la modélisation. Pour une fusion initiée par le fond du réservoir, le modèle est modifié afin de prendre en compte la présence d'une phase gazeuse, qui résulte de la variation de volume lors du changement de phase et qui est positionnée sur l'interface.

**Mots-clés** : fusion ; urée ; modélisation, changement de phase, convection naturelle.

**Abstract** – This work presents a numerical study to follow the melting process of urea inside a rectangular tank. The process is initiated by the presence of electrical resistances positioned on the lateral or horizontal side. Experiments for heating from the vertical side are used to validate the model. For melting initiated at the bottom of the tank, the model is modified to take into account the presence of a gas phase positioned on the solid-liquid interface, which is involved by volume variation during phase change.

**Keywords**: melting, urea, simulation, phase change, natural convection

### Nomenclature (11 points, 2 colonnes)

*B* constante,  
*c* capacité thermique massique,  $J \text{ kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$   
*g* constante de gravité,  $\text{m s}^{-2}$   
*h* enthalpie massique,  $J \cdot \text{kg}^{-1}$   
*L* chaleur latente,  $J \cdot \text{kg}^{-1}$   
*k* conductivité thermique,  $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$   
*S* terme source,  $\text{W m}^{-3}$   
*t* temps, s  
*T* température, K  
 *$\bar{u}$*  vitesse,  $\text{ms}^{-1}$

### *Symboles grecs*

$\alpha$  diffusivité thermique,  $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$   
 $\rho$  masse volumique,  $\text{kg m}^{-3}$   
 $\theta$  fraction liquide  
 $\mu$  viscosité dynamique, Pa.s

### *Indices et exposants*

*p* paroi  
*g* gaz  
*s* solide  
*l* liquide  
*eff* effectif

## 1. Introduction

Le système SCR, qui équipe la majorité des véhicules diesel, injecte une solution d'AdBlue® (mélange d'eau et d'urée) pour capter les NOx au niveau du pot catalytique (système SCR). En période hivernale, la congélation de cette solution autour de  $-11^{\circ}\text{C}$  le rend inutilisable. Il faut alors intégrer un système chauffant pour faire fondre l'AdBlue®.

Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une stratégie de conception et d'optimisation de ce système de chauffage. Une première étape porte sur le développement d'un modèle numérique permettant de prédire l'évolution du volume d'AdBlue liquide utilisable, en fonction du nombre d'éléments chauffants intégrés au système SCR et de leur puissance. Il devra permettre de donner une indication sur l'implantation des résistances chauffantes pour obtenir un volume liquide d'AdBlue suffisant dans les toutes premières minutes avant le démarrage. L'objectif est de savoir sur le plan de la conception si, à même puissance transmise au matériau, il vaut mieux placer la résistance électrique sur le fond du réservoir ou sur la paroi verticale.

Cette étude propose d'y répondre à travers le développement d'une modélisation et d'expérimentations spécifiques mises en œuvre pour observer les phénomènes physiques en présence et évaluer la cinétique du volume fondu de l'AdBlue® pour différentes valeurs des conditions de flux imposées sur les parois du réservoir.

## 2. Modélisation

De nombreuses méthodes numériques sont proposées dans la littérature pour résoudre les problèmes de transfert de chaleur avec changement de phase (fusion ou solidification). Le principal défi posé par ces problèmes réside dans la non-linéarité due au déplacement de l'interface, dont la position et la forme évoluent dans le temps selon les apports thermiques. Dans le cadre notre étude, on implémente une méthode à maillage fixe basée sur une formulation enthalpique de l'équation de conservation de l'énergie, et qui utilise la fraction liquide locale pour suivre le déplacement du front de fusion.

### 2.1 Hypothèses simplificatrices

La formulation du problème est basée sur un certain nombre d'hypothèses simplificatrices, qui sont liées à la géométrie, au type d'écoulement, aux mécanismes de transferts et aux problèmes de changement de phase. Dans le cas envisagé, on considère que l'écoulement dans la phase liquide est laminaire, incompressible et newtonienne. On néglige la dissipation visqueuse. Les propriétés physiques sont supposées constantes, à l'exception de la masse volumique dans le terme de force de volume (approximation d'Oberbeck-Boussinesq). Celle-ci implique que la masse volumique  $\rho$  est considérée constante hormis dans le terme source de gravité, qui régit la convection naturelle dans l'équation de quantité de mouvement.

### 2.2. Formulation des équations

En tenant compte des hypothèses posées précédemment, on peut écrire le système d'équations suivant:

. l'équation de conservation de la masse :

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0 \quad (1)$$

. l'équation de conservation de l'énergie :

$$\rho \frac{Dh}{Dt} = k(\nabla \cdot \nabla T) + S \quad (2)$$

où  $S$  est un terme source, considéré nul dans le cadre de notre étude.

. l'équation de la quantité de mouvement :

$$\rho \left( \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla \vec{u} \right) = -\nabla p + \mu \nabla \cdot \nabla \vec{u} + \rho \vec{g} \quad (3)$$

Comme décrit par Voller [1], l'équation de conservation de l'énergie peut être transformée en tenant compte de l'enthalpie  $h$  du matériau sous l'expression suivante:

$$h = \begin{cases} c_s T; & T < T_m \\ c_l T + (c_s - c_l) T_m + L; & T \geq T_m \end{cases} \quad (4)$$

$T_m$  est la température de changement de phase solide-liquide. Cette expression peut aussi se traduire sous la forme :

$$h = [\theta c_l + (1 - \theta) c_s] T + \theta (c_s - c_l) T_m + \theta L \quad (5)$$

Le paramètre  $\theta$ , qui représente la fraction liquide, est introduit pour indiquer la nature de la phase du matériau.  $\theta = 1$  si le matériau est à l'état liquide et  $\theta = 0$  si le matériau est à l'état solide. L'équation de l'énergie peut alors être écrite sous une forme générale :

$$\rho [\theta c_l + (1 - \theta) c_s] \left( \frac{\partial T}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla T \right) = k(\nabla \cdot \nabla T) - \frac{\partial \theta}{\partial t} \rho [(c_s - c_l)(T_m - T) + L] \quad (6)$$

## 2.3 Méthode de résolution

Pour résoudre ces équations, on utilise la méthode des volumes finis sur un maillage structuré, avec l'algorithme SIMPLEC pour la correction de pression, la méthode itérative de Gauss-Seidel pour résoudre les équations linéarisées des champs de température et de vitesse et une méthode itérative du gradient conjugué pour résoudre le champ de pression.

Suggérée par Gartling [2], la viscosité est modifiée en utilisant l'expression (7) qui permet lorsque la valeur du terme de pénalisation  $B$  est élevée, d'imposer une valeur très élevée pour la viscosité lorsque  $\theta = 0$  (état solide) :

$$\mu_{eff} = \mu + B (1 - \theta) \quad (7)$$

## 2.4 Conditions aux limites

Sur le plan des transferts thermiques, les conditions aux limites sur les parois chauffées considérées sont des conditions de flux uniforme imposé constant. Les parois non chauffées sont considérées comme adiabatiques. Concernant l'écoulement de la phase liquide qui serait en contact avec la paroi, une condition de non-glissement est considérée.

## 3. Le matériau à changement de phase

Le matériau est formulation industrielle à base d'urée, dénommé AdBlue® dont les propriétés physiques sont présentées dans la la table 1. Ce produit est un mélange eutectique.

Table 1. Propriétés physiques de l'AdBlue®

Propriété	Symbole	Unité	Valeur
Masse volumique solide	$\rho_s$	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	1030
Conductivité thermique solide/liquide	$k_s / k_l$	$\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	2.2 / 0.57
Capacité thermique massique solide/liquide	$c_s / c_l$	$\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	1600/3400
Viscosité dynamique	$\mu$	$\text{Pa} \cdot \text{s}$	0.0025
Température de fusion	$T_m$	$^{\circ}\text{C}$	-11.4
Chaleur latente	$L$	$\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$	290

Selon le fournisseur BASF [3], la masse volumique de la phase liquide varie en fonction de la température selon :

$$\rho_l = -0.001628 \cdot T^2 - 0.4283 \cdot T + 1100 \quad (8)$$

La concentration du mélange eau-urée considérée dans l'étude correspond exactement au point eutectique si bien que lors de la fusion, le passage de la phase solide à la phase liquide lors de l'élévation en température peut être comparable à celle d'un corps pur. A l'état liquide, l'AdBlue® a la même consistance que l'eau. Il devient blanc lorsqu'il est gelé. La cellule contenant l'AdBlue® est placée dans un congélateur dont la température peut descendre jusqu'à  $-25^{\circ}\text{C}$  avant chaque essai.

#### 4. Expérimentation

Un schéma du réservoir est présenté à la Fig. 1. La cavité d'essai est constituée d'une enceinte de section rectangulaire dont les dimensions intérieures sont de 300 mm de largeur, 135 mm de hauteur et 150 mm de profondeur.

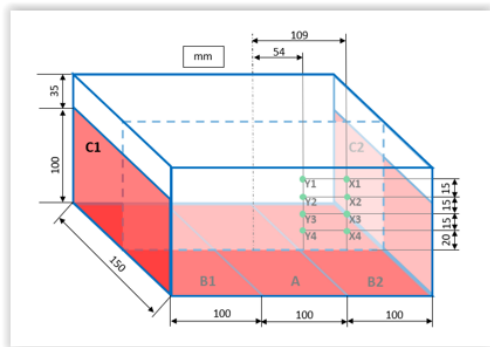


Figure 1: Schéma du réservoir et position des sondes de température (séries X et Y) et des résistances chauffantes

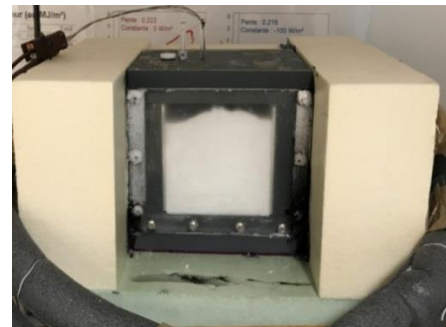


Figure 2: Photographie du réservoir

Trois résistances électriques planes et rectangulaires, notées respectivement B1, A et B2, sont disposées sur le fond de la cavité. Leur dimension est de 150mmx100mm et la puissance dissipée par chaque résistance peut atteindre au maximum 60W. Une vue du dispositif est présentée sur la Figure 2. Un côté vertical de la cuve en face avant est transparent pour permettre l'observation visuelle du processus de fusion, les autres faces sont isolées.

L'évolution temporelle de la forme du front de fusion est enregistrée par une caméra CCD (Imaging Source DMK 23U445). Huit thermocouples de type T ont été placés à 20, 35, 50, 65 mm de la paroi inférieure. Quatre sondes sont sur un axe vertical à 91 mm de la paroi latérale,

et quatre autres à 146 mm. Ces capteurs sont montés sur une tige en plastique rigide qui permet de contrôler leur position lorsqu'ils sont introduits dans la cavité.

La précision des thermocouples est de 0,5°C. L'incertitude sur la position des perles du capteur avec le point désiré est de 0,5mm. L'incertitude sur la position de l'interface solide/liquide a été estimée à  $\pm 0,5$  mm.

## 5. Confrontation Simulation – Expérience

### 5.1 Chauffage par les parois latérales

On présente ici les résultats obtenus pour une puissance de 100 W imposée par les résistances électriques placées sur chacune des faces latérales. La Figure 3 montre, à titre d'exemple, en couleur rouge la position de l'interface solide-liquide simulée par le modèle au regard des clichés obtenus au moyen du dispositif. La confrontation des résultats montre un bon accord mis à part sur la partie supérieure du matériau où l'interface simulée apparaît se déplacer plus rapidement. Ce désaccord s'explique par la condition d'adiabaticité qui n'est pas tout à fait respectée expérimentalement et par la différence de masse volumique liquide-solide. La validation du modèle est confirmée sur les autres essais effectués à différentes puissances.

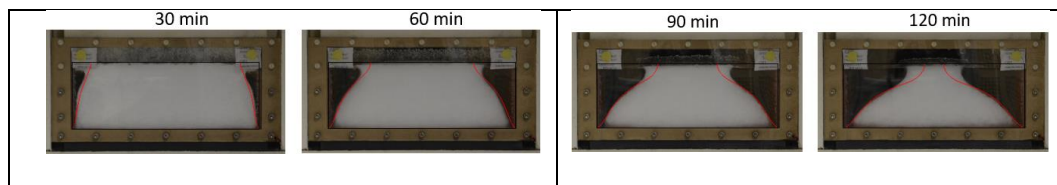


Figure 3 : Images du matériau en cours de fusion à  $t=30$ min, 60min, 90 min et 120 min- chauffage par les parois latérales – trait rouge : position du front liquide-solide obtenue par simulation

Les déplacements d'interface dans ce type de configuration ont été largement décrits dans la littérature (voir par exemple [4,5,6]). L'inclinaison du front de fusion, au fur à mesure du processus, s'explique par le développement du transfert de chaleur non-uniforme par convection naturelle qui plus élevé en haut de la paroi chauffante.

### 5.2 Chauffage par la paroi horizontale inférieure

La Figure 4 présente les résultats obtenus lorsque la résistance électrique positionnée uniquement au centre de la paroi inférieure impose une puissance de 60W. Les clichés montrent une interface solide-liquide quasi plane et parallèle à l'horizontale. Ce n'est pas le cas de l'interface obtenue par simulation, qui fait apparaître une forme très différente.



Figure 4 : Visualisations en cours de fusion à  $t=40$ min, 80min, 120 min et 160 min- chauffage par la paroi horizontale – trait rouge : position du front liquide-solide obtenue par simulation

Ce désaccord trouve son explication dans la présence de zones gazeuses (Figure 5) qui se créent à l'interface tout au long du processus. Cette 3<sup>ème</sup> phase résulte de la variation de volume lors du changement de phase solide-liquide. Du fait que ( $\rho_s < \rho_l$ ), la transformation solide-

liquide induit une diminution de volume, qui est comblé immédiatement à la fois par les gaz dissous dans le matériau et par des infiltrations possibles d'air le long des parois. Les images enregistrées lors du processus montrent que ces zones gazeuses ne sont pas réparties uniformément sous l'interface. Leur présence crée une résistance thermique qui limite localement les transferts et ralentit l'avancée du front. Sur la partie de l'interface solide-liquide sans présence de bulles de gaz, le front continue sa progression mais cette zone sera ensuite investie par les bulles du fait d'instabilités induites par la poussée d'Archimède comme illustré schématiquement sur la Figure 6. Ce processus de déplacements répétitifs de poches gazeuses au niveau de l'interface développe finalement une progression quasi-plane du front de fusion.



Figure 5 : Photo de l'interface en présence de bulles

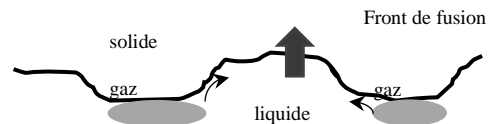


Figure 6 : Représentation schématique de l'interface en présence des zones gazeuses

Pour prendre en compte cette troisième phase, un algorithme a été implémenté dans le code, qui consiste à prendre en compte la part de volume gaz  $V_g^n$  induit lors du changement de phase d'un volume de solide en liquide, à partir de l'expression :

$$V_g^n = V_g^{n-1} + (1 - \rho_{solid}/\rho_{liquid})(V_s^{n-1} - V_s^n) + V_l^n \quad (9)$$

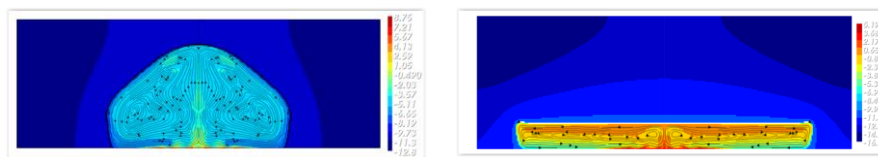


Figure 7 : simulation de la position du front sans prendre en compte la phase gazeuse ( à gauche) et en prenant en compte la phase gazeuse (à droite)

La figure 7 montre la nouvelle forme du front et le bon accord obtenu avec les clichés expérimentaux (Figure 8) ; il en est de même sur les résultats des profils de température issus de la simulation et par l'expérimentation présentée Figure 9. Cette confrontation atteste de la validité de l'approche proposée. Les fluctuations de température observées après la montée rapide en température sont liées aux mouvements de convection naturelle.



Figure 8 : Images du matériau en cours de fusion à  $t=40\text{min}$ ,  $80\text{min}$ ,  $120\text{ min}$  et  $160\text{ min}$ - chauffage par la paroi horizontale – trait rouge :simulation de la position du front

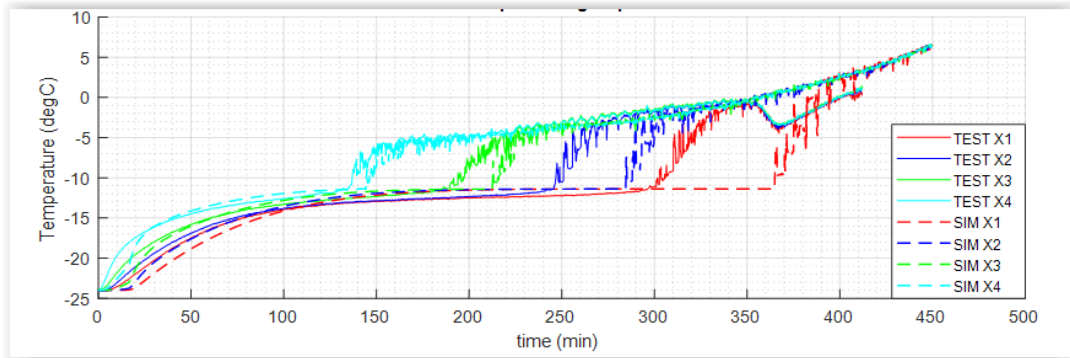


Figure 9: *profils de température pour des sondes situées à 91 mm (groupe X) de la paroi latérale, trait plein : simulation trait pointillé : expérience*

### 5.3 Choix de la configuration optimale pour les résistances

Cette étude a été menée afin de déterminer la meilleure position des résistances chauffantes qui permettrait de faire fondre un volume maximal d'urée dans un temps restreint d'une minute. La figure 10 montre, pour une puissance électrique totale imposée de 60W, la fraction de volume d'AdBlue® fondue en fonction du temps pour un chauffage par les parois latérales et un chauffage par la paroi horizontale au centre. Au bout de 40s, la fraction fondue est de 0,06% pour une résistance chauffante placée au fond du réservoir alors qu'elle n'est que de 0,02% pour une résistance placée sur la face latérale. Des résultats similaires sont obtenus pour des puissances supérieures. Finalement, l'étude montre que le meilleur emplacement est de positionner la résistance chauffante sur le fond et au centre du réservoir si l'on souhaite fondre un volume conséquent dans la première minute de chauffage, qui va conditionner le démarrage.

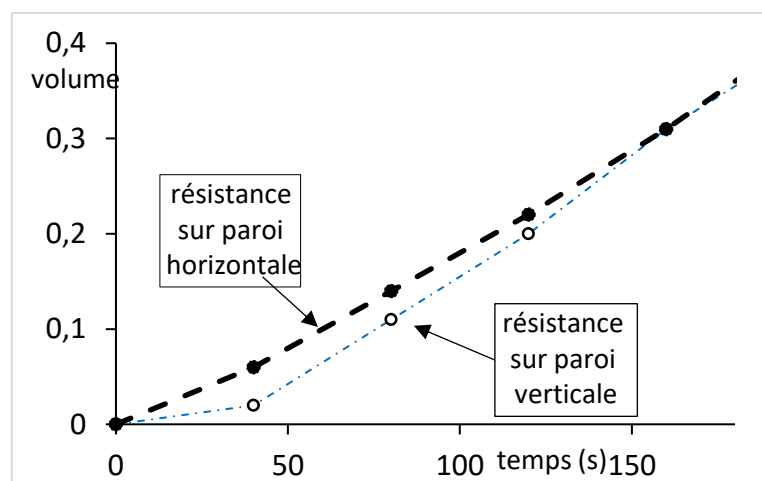


Figure 10 : *fraction d'AdBlue® fondue en fonction du temps pour une puissance électrique de 60W*

## 6. Conclusion

Une modélisation a été développée pour simuler la fusion d'une solution d'urée dans un réservoir. Après validation, cet outil de simulation permet, suivant la configuration de chauffage adoptée, d'évaluer la fraction fondue en fonction du temps. Pour le chauffage par le fond du réservoir, il est nécessaire de prendre en compte l'apparition d'une phase gazeuse, liée au

« vide » développé lors du changement d'état solide –liquide. Le modèle a été adapté et les résultats numériques obtenus sont conformes aux observations expérimentales. La validation du modèle ainsi faite, cet outil sera prochainement utilisé en vue de déterminer le positionnement et la puissance des résistances à placer des réservoirs réels qui sont géométries plus complexes.

### **Bibliographie**

- [1] V. Voller, Prakash C., A fixed grid numerical modeling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems, *Int. J. Heat Mass Trans.*, 30, (1987), 1709–1719.
- [2] D.K. Gartling, Finite Element Analysis of Convection Heat Transfer Problems in Phase Change, Computer Methods in Fluids, Pentech London, 1980.
- [3] BASF, Fiche techniques AdBlue®, [http://www.ccvvt.fr/IMG/pdf/fds\\_-\\_adblue.pdf](http://www.ccvvt.fr/IMG/pdf/fds_-_adblue.pdf)
- [4] C. Gau, R. Viskanta, Melting and Solidification of a Pure Metal on a Vertical Wall”. *Journal of Heat Transfer*, 108, (1986),174-181.
- [5] O. Bertrand, B. Binet, H. Combeau, S. Couturier, Y. Delannoy, D. Gobin, M. Lacroix, P. Le Quéré, M. Médale, J. Mencinger, H. Sadat, G. Vieira, “Melting driven by natural convection A comparison exercise: first results”, *International Journal of Thermal Sciences*, 38, (1999), 5–26.
- [6] Z. Younsi, A. Joulin, L. Zalewski, S. Lassue, D. Rousse, Analyse numérique de la fusion de matériaux à changement de phase dans une enceinte rectangulaire chauffée par une paroi latérale, *IX<sup>ème</sup> colloque interuniversitaire franco-québécois*, (Lille, 18-20 mai 2009).

### **Remerciements**

Les auteurs souhaitent remercier la société Plastic Omnium pour leur aide financière.