optimisation des paramètres de dégradation thermique des matériaux à partir d'essais de perte de masse au cône calorimètre

A.Coppalle, M. Mrad

CNRS UMR 6614 - CORIA, 76801 BP-12, Saint Etienne du Rouvray,

Points abordés:

- Optimisation
- THERMAKIN: détails
- Résultats: -PMMA
 - un composite
- Conclusion



La pyrolyse: un challenge pour la modélisation

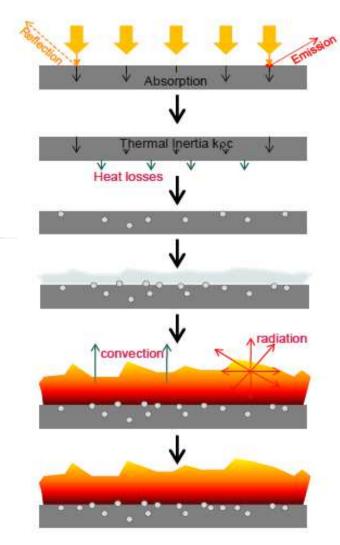


Table 2.3: Ranges of variability extracted from the literature for the main input parameters of pyrolysis models applied to PMMA samples.

Parameter	Range		
Thermal conductivity	k	[W/(m.K)]	[0.13; 0.27]
Specific heat	С	[J/(kg.K)]	[1200; 3050]
Density	ρ	$[kg/m^3]$	[1000; 1220]
Effective attenuation coefficient (black PMMA)	$\bar{\kappa}$	[m·1]	[333;5340]
Surface temperature at ignition	$T_{s ign}$	[K]	[523;673]
Mass flux at ignition	$\dot{m}_{F\;ign}^{\prime\prime}$	$[g/(m^2.s)]$	[1.00; 5.6]
Heat transfer coefficient	Н	$\left[W/(m^2.K)\right]$	[3.5;34]
Activation energy	E_a	[kJ/mol]	[31; 290]
Pre-exponential factor	A	$[s^{\cdot 1}]$	$[1.1 \cdot 10^0 ; 4.50 \cdot 10^{23}]$
Order of reaction	n	[·]	[0.5; 2.2]
Reflectivity coefficient	г	[•]	[0; 0.15]
Heat flux	$\dot{q}_e^{\prime\prime}$	$[kW/m^2]$	[-13 % ; +3 %]
Heat of pyrolysis	ΔH_p	[kJ/g]	[0.42; 1.007]

Thèse N. Bal 2009



Optimisation des paramètres ? *Méthode générale:*

- Définir une fonction cout fonction des paramètres X

Ex : avec la perte de masse PM au cours d'un essai au cone calorimètre $f(x) = \sum_{max} (PM^{al}(x,t_i) - PM^{mes}(t_i))^2$

- Modéliser les valeurs de la fonction cout (PM^{cal}(X,t)) (Quel modèle ? En générale 1D pour des raisons de temps CPU)

- Minimiser cette fonction cout (quelle méthode ?)

Intérêts et avantages:

- Déterminer les paramètres X nécessaires au modèle
 - Validation sur les valeurs expérimentales disponibles
- Faire des analyses de sensibilité (paramètres les plus influents)
- mieux comprendre les phénomènes
- Inconvénients: La qualité des résultats liée aux faiblesses du modèle

Modèle 1D: La phase gaz et les interactions flamme-solide non modélisées Paramétrisation des flux de masse et d'énergie à la surface

- Sens physique des paramètres optimisés ?

fort/faible, juste des paramètres efficaces pour la modélisation?

- Optimisation difficile:

Minimum locaux nombreux, effet de compensation entre les paramètres X

Optimisation des paramètres?

Quel algorithme d'optimisation?

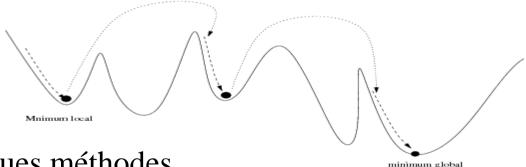
➤ Minimisation de la fonction cout

===> Critère de convergence

Or tout algorithme nécessite des choix (espace réalisable, initialisation, ... Pourcentage élevé de succès ?

Rapidité de convergence? (Rappel: le cout CPU du modèle 1D)

➤ Eviter les solutions locales et rechercher les solutions globales.



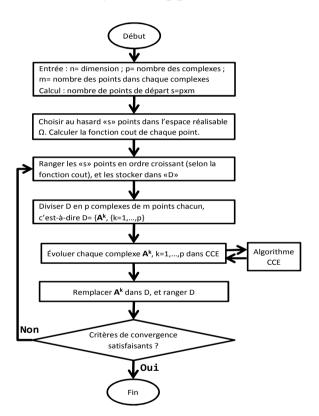
- ➤ Quelques méthodes
 - algorithme génétique
 - 'stochastic hill-climber'
 - Suffled Complex Evolution (Duan, J. Optimization Theory and Appl., 1993)



Optimisation des paramètres?

- Méthode 'Suffled Complex Evolution' (SCE)

(Duan, J. Optimization Theory and Appl., 1993)



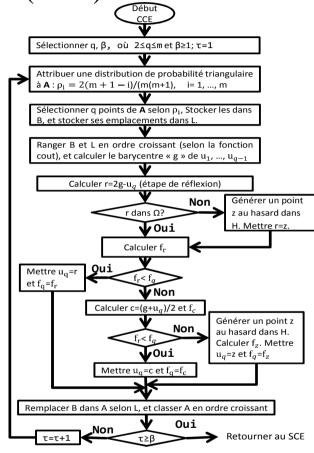


Schéma simplifié de l'algorithme (SCE à gauche)

associé à la méthode 'Compétitive Complexe Evolution (CCE à droite).



THERMAKIN: détails (stoliarov, comb & flame 2009)

➤ Modélisation 1D du matériau soumis à un flux thermique

$$\sum_{j}^{N} Y_{i} C_{P,i} \frac{\partial T}{\partial t} = H_{L} R + \sum_{j}^{N} \lambda_{i} \frac{\partial^{2} T}{\partial x^{2}} - \frac{\partial q_{r}}{\partial x}$$
$$\frac{\partial Y_{i}}{\partial t} = (-1)^{i} R + D_{i} \frac{\partial^{2} Y_{i}}{\partial x^{2}}$$

- ➤ un pas de temps de 10⁻² s et un pas en espace de 50 10⁻⁵ m sont suffisants
- ➤ une réaction unique pour transformer la matière solide en phase gazeuse.

Le taux de réaction est du 1^{er} ordre $R = -Y_g k = Ae^{-E/RT}$

➤ Les conditions limites à la surface exposée: $\Phi_g = a_g Y_g^p$

$$\Phi_{recu} = h_c (T^p - T^{amb}) + \Phi_{recu}^{ext} + \Phi_{recu}^{flamme}$$

Résultats: PMMA

*matériau homogène :

si propriétés indépendantes de la TP: 14 parametres!

DENSITY: P EMISSIVITY and ABSORPTION:

HEAT CAPACITY: c SWELLING: γ_s (= 0 without, =1 full effect)

CONDUCTIVITY: k

TRANSPORT: Dg

Arrhenius law: A & E Δh_L

Heat of combustion: Δh_{comb} (pour la conversion MLR<-> HHR)

*matériau homogène :

si propriétés fonction de la TP: P=a+bT

14 + 9 = 23 parametres!

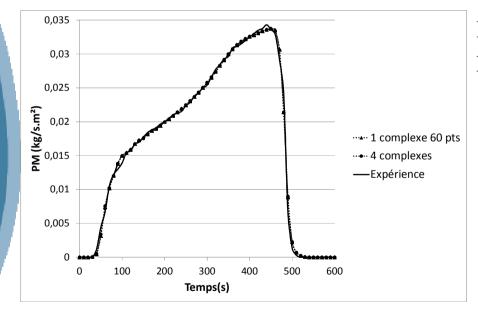
*Autre paramètre sensible Φ^{flamme}_{recu} 23+1= 24 parametres!



Résultats: PMMA, 50kW/m2

*réduction du problème:

- propriétés indépendantes de la TP: ρ_s $c_{p,s}$ λs
- Prop gaz fixées ($D_g=10^{-5}$ (SI))
- -Optimisation de la perte de masse: Δh_{comb} pas nécessaire
- Emissivité et absorption de la surface fixées
- Φ_{recu}^{flamme} fixé à 10 kW/m2 E A H_L



Excellent accord entre PM calculée et mesurée, pas de différence avec les deux jeux de paramètres

6 parametres!

Perte de masse (Kg/s/m²) du PMMA en fonction du temps, soumis à un flux de 50kW/m², valeurs expérimentales et théoriques. Deux choix d'optimisation, avec un seul (avec 60pt) ou 4 complexes (2100-2400 itérations)

Résultats: PMMA, 50kW/m2

valeurs optimisées des 6 paramètres

	$ ho_{ m S}$	C_{s}	$\lambda_{ m s}$	Е	A	H_{L}	
	kg.m ⁻³	J/Kg	W/m/K	kJ.mole ⁻¹	s-1	kJ.kg ⁻¹	
60 pts	1,18 E3	1,60 E3	0,23	207,8	8,60 E12	1,02 E3	
4 complexes	1,18 E3	1,43 E3	0,21	214,2	8,59 E12	0,96 E3	
Val. exp [*]	1,11 E3	2,13 E3	0,19	188,0	8,6 E12	0,85 E3	

([*] Stoliarov, comb & flame 2009 et 2013)

- les valeurs obtenues avec les deux choix d'optimisation sont très proches.
- ➤ Bon accord aussi avec les valeurs expérimentales, sauf pour Cs

Résultats: PMMA, 50kW/m2

 ρ_{s} $c_{p,s}$ λs E A H_{L}

- -Optimisation de la perte de masse: Δh_{comb} pas nécessaire
- Emissivité et absorption de la surface fixées
- $\Phi_{recu}^{flamme} \Gamma \times 2 10 \text{ kW/m}^2$

6+1 parametres!

===>Même excellent accord que précédemment entre PM calculée et mesurée

valeurs optimisées pour 7 paramètres

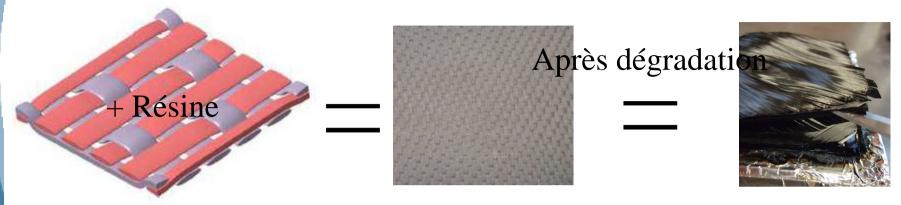
	$ ho_{ m S}$	C_{s}	$\lambda_{ m s}$	E	A	H_L	$\Phi_{\it recu}^{\it flamme}$	
	kg.m ⁻³	J/Kg	W/m/K	kJ.mole ⁻¹	s-1	kJ.kg ⁻¹	Kw/m2	
75 pts	1,18 23	1,46 E3	0,22	211,0	8.91 E12	0,94 E3	9,88	
5 complexes	1,18 E3	1,50 E3	0,22	207,8	6,98 E12	0,96 H3	9,79	
Val. exp [*]	1,11 13	2,13 E3	0,19	188,0	8,6 E12	0,85 E3	Non disp.	

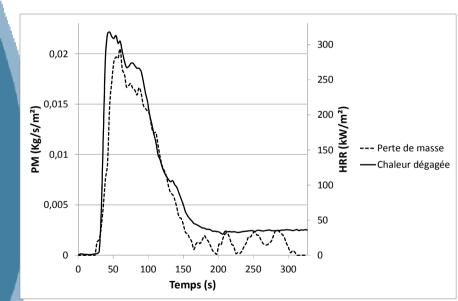
valeurs optimisées pour 6 paramètres

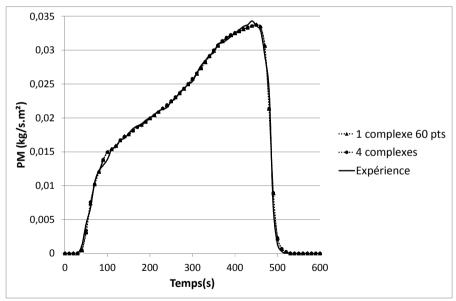
	$ ho_{ m S}$	$C_{\rm s}$	$\lambda_{ m s}$	Е	A	H_L	$\Phi_{ m \it recu}^{ m \it flamme}$	
	kg.m ⁻³	J/Kg	W/m/K	kJ.mole ⁻¹	s-1	kJ.kg ⁻¹	kW/m2	
60 pts	1,18 E3	1,60 E3	0,23	207,8	8,60 E12	1,02 E3	Fixé 10	
4 complexes	1,18 E3	1,43 E3	0,21	214,2	8,59 E12	0,96 E3	Fixé 10	
Val. exp [*]	1,11 E3	2,13 E3	0,19	188,0	8,6 E12	0,85 E3	Non disp	



Résultats: un composite (fibres carbones, 70kW/m2)







Perte de masse (Kg/s/m2) et chaleur dégagée (kW), mesurées lors d'un essai avec le composite AcF2 soumis à un flux de 70kW/m2

Cas du PMMA

Résultats: un composite (fibres carbones, 70kW/m2)

Réduction du problème

➤ Le matériau est inhomogène,

ses propriétés thermiques sont déterminées grâce à des lois de mélange.

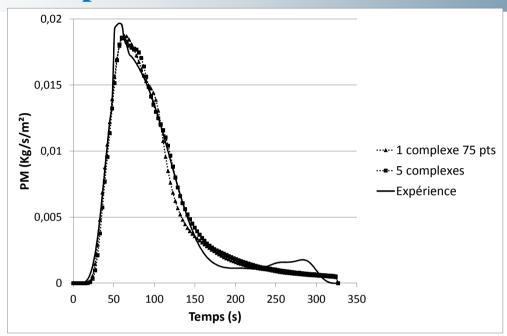
$$\frac{1}{\rho_{m}} = \frac{Y_{f}}{\rho_{f}} + \frac{Y_{r}}{\rho_{r}}; \ \frac{1}{\lambda_{m}} = \frac{V_{f}}{\lambda_{f}} + \frac{V_{r}}{\lambda_{r}} \ et \ c_{p,m} = Y_{f}c_{p,f} + Y_{r}c_{p,r}$$

- ➤ Pour la conductivité thermique, la relation correspond au cas où les couches de fibre sont perpendiculaires au flux.
- \blacktriangleright La concentration massique de la résine est supposée égale à $Y_r = 30\%$.
- Les propriétés des fibres sont supposées connues, et prises égales

$$\rho_f = 1800, c_{p,f} = 921 \text{ et } \lambda_f = 15 \text{ (SI)}$$

 $ightharpoonup
ho_r$ $c_{p,r}$ λ_r E A H_L Φ_{recu}^{flamme} 7 parametres!

Résultats: un composite (fibres carbones, 70kW/m2)



Perte de masse (Kg/s/m2) du composite AcF2 soumis à un flux de 70kW/m2, valeurs expérimentales et optimisées.

	ρ_{r}	C_{r}	$\lambda_{ m r}$	E	A	H_{L}	$\Phi_{\it recu}^{\it flamme}$
	kg.m ⁻³	J/Kg	W/m/K	kJ.mole ⁻¹	s-1	kJ.kg ⁻¹	Kw/m2
75 pts	1,04 E3	2,19 E3	0,66	118,2	4,02 E12	0,297 E3	25,0
5 complexes	1,13 E3	2,09 E3	0,64	118,0	5,42 E12	0,292 E3	22,5
Val. exp [10]	1,18 E3	1,89 E3	0,51	169,9	0,21 E12	Non disp	Non disp

Conclusion

- ➤ La méthode d'optimisation « Shuffled Complexe Evolution » donne de bons résultats pour un polymère homogène, le PMMA.
- Son application à un matériau composite donne aussi des bons résultats pour les paramètres physiques du matériau, mais reste à améliorer la détermination de la cinétique de la dégradation.

Discussion

Objectif de l'optimisation des paramètres de dégradation thermique:

déterminer les paramètres du modèle utilisé!

Autre modèle===> autres paramètres

Quels paramètres doivent être optimisés?

-ceux qui ne sont pas accessibles à la mesure?

Ex: Les variations avec T

-Ceux qui sont mesurables ? ===> validation / mesure

➤ La perte de masse est elle le seul critère possible ?

Température à la surface exposée? à la surface non exposée?

➤ Comment définir mathématiquement les couplages dans l'optimisation?