



HAL
open science

Modélisation et expérimentation des transferts de matière et de quantité de mouvement dans les réacteurs à lit fixe

François Lesage

► **To cite this version:**

François Lesage. Modélisation et expérimentation des transferts de matière et de quantité de mouvement dans les réacteurs à lit fixe. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Lorraine - INPL, 2000. Français. NNT: . tel-00790847

HAL Id: tel-00790847

<https://theses.hal.science/tel-00790847>

Submitted on 21 Feb 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Modélisation et expérimentation des transferts de matière et de quantité de mouvement dans les réacteurs à lit fixe

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 10 novembre 2000

pour l'obtention du

Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
(spécialité Génie des Procédés)

par

François LESAGE

Ingénieur ENSIC

Composition du jury

- Président :* M. G. VALENTIN, Directeur de Recherches (ENSIC-INPL)
- Rapporteurs :* M. J. COMITI, Professeur (IUT de Saint-Nazaire)
M. C. DESLOUIS, Directeur de Recherches (Université de Paris VI)
- Examineurs :* M. M.A. LATIFI, Professeur (ENSIC-INPL)
M. N. MIDOUX, Professeur (ENSIC-INPL)
Mme D. TOYE, Chargée de recherches (Université de Liège)

A mes parents

Table des matières

Table des figures	vi
Liste des tableaux	ix
Nomenclature	1
Introduction générale	5
1 Dispositif expérimental, techniques de mesure et traitement du signal	8
1.1 Le réacteur	8
1.2 Mesure de pression	10
1.3 Micro-électrodes	11
1.3.1 Principe général et fluides utilisés	12
1.3.2 Quelques éléments de théorie sur les micro-électrodes	12
1.3.3 Reconstruction du signal de gradient de vitesse	14
1.3.4 Conception et implantation des électrodes	16
1.3.5 Appareillage électronique	17
1.3.6 Etalonnage des électrodes	18
1.3.7 Mise en œuvre	20
1.4 Caractéristiques physicochimiques des fluides utilisés	21
1.5 Analyse du signal	22
1.5.1 Grandeurs statistiques	22
1.5.2 Analyse en fréquence	23
1.5.3 Analyse temps-fréquence	25
1.5.4 Méthode VITA et traitement associé	25

I	Eléments de modélisation	29
2	Modélisation en écoulement monophasique	30
2.1	Introduction	30
2.2	Modélisation et simulation numérique de l'écoulement	30
2.2.1	Etablissement des équations du modèle	31
2.2.2	Modélisation de la variation de porosité	33
2.2.3	Modèle monodimensionnel	36
2.2.4	Résultats du modèle monodimensionnel	39
2.2.5	Modèle bidimensionnel	46
2.2.6	Résultats	49
2.2.7	Formulation en volumes finis	55
2.2.8	Résultats des simulations par la méthode des volumes finis	57
2.3	Modélisation du transfert de matière	59
2.3.1	Equations du modèle	59
2.3.2	Modèle piston	61
2.3.3	Résultats du modèle piston	62
2.3.4	Modèle à deux zones	64
2.3.5	Résultats du modèle à deux zones	65
2.3.6	Modèle monodimensionnel	65
2.3.7	Résultats du modèle monodimensionnel	66
2.3.8	Résolution de l'équation complète (bidimensionnelle)	67
2.4	Conclusions	68
3	Modélisation de l'écoulement biphasique	70
3.1	Introduction	70
3.2	Revue bibliographique succincte	71
3.3	Mise en équation du problème	71
3.3.1	Equations en variables primaires	71
3.3.2	Formulation pression - saturation	72
3.3.3	Conditions aux limites	74
3.4	Méthodes de résolution	75
3.4.1	Première approche	75
3.4.2	Seconde approche	76
3.5	Résultats obtenus	79

3.5.1	Établissement de l'écoulement	79
3.5.2	Comparaison aux données expérimentales	79
3.6	Conclusions	82
II Résultats expérimentaux		83
4	Résultats expérimentaux en écoulement monophasique de liquide	84
4.1	Introduction	84
4.2	Régimes d'écoulement en écoulement monophasique : étude bibliographique	84
4.3	Résultats des mesures par microélectrodes internes	85
4.3.1	Généralités	85
4.3.2	Analyse statistique des signaux	86
4.3.3	Spectres de puissance	89
4.3.4	Autocorrélations des mesures	93
4.3.5	Intercorrélations des mesures	99
4.3.6	Analyse fréquentielle : conclusions	101
4.3.7	Interprétation du transfert de matière liquide-solide à l'aide de la méthode VITA	101
4.4	Conclusions	106
5	Résultats expérimentaux en écoulement biphasique	107
5.1	Introduction	107
5.2	Régimes d'écoulement et caractérisation de l'hydrodynamique : bibli- ographie	107
5.2.1	Transitions de régime	108
5.2.2	Propriétés hydrodynamiques des pulsations	109
5.3	Mesures locales de pression : résultats expérimentaux	110
5.3.1	Transitions de régime et fréquence de pulsation	110
5.3.2	Vitesse de passage des pulsations	115
5.4	Microélectrodes	117
5.4.1	Introduction	117
5.4.2	Examen et remarques préliminaires	117
5.4.3	Analyse statistique et fréquentielle	118
5.4.4	Intercorrélation des mesures	123

5.5 Conclusions	123
Conclusion générale et perspectives	125
Bibliographie	128
Annexes	133
A Modèle à deux zones : détail des calculs	134
B Convertisseur courant/tension	137
C Titrage des solutions	139
C.1 Protocole opératoire	139
C.2 Analyse des résultats	139

Table des figures

1.1	Dispositif expérimental	9
1.2	Détail du distributeur de fluides	10
1.3	Positionnement des capteurs de pression	11
1.4	Détail d'un capteur de pression	11
1.5	Schéma de principe de l'électrode en paroi inerte	13
1.6	Fonction de transfert électrochimique H	16
1.7	Schéma d'une sonde	17
1.8	Photographie microscopique d'une sonde électrochimique	17
1.9	Assemblage des sondes	17
1.10	Sondes électrochimiques disposées en tétraèdre	18
1.11	Positionnement des sondes dans la colonne	18
1.12	Schéma de principe du convertisseur courant/tension	19
1.13	Réponse à un échelon de polarisation	20
1.14	Détermination de l'aire de la sonde	20
1.15	Courbes intensité-potential pour différents débits de liquide	21
1.16	Temps caractéristiques de C_{xx}	24
2.1	Fonctions de porosité - $\bar{\varepsilon} = 0,39$	35
2.2	Profils de vitesse calculés par le modèle 1D, $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$	39
2.3	Profils de vitesse calculés par le modèle 1D, $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$	40
2.4	Gradients de vitesse à la paroi : comparaison des simulations aux mesures expérimentales	41
2.5	Comparaison des pertes de charges simulées (1D) et expérimentales	42
2.6	Comparaison des simulations avec le modèle de Vortmeyer et Schuster	43
2.7	Viscosité effective μ_{eff}	44
2.8	Quantification de l'effet de paroi	45
2.9	By-pass modifié pour différents rapports D_c/d_p	46
2.10	Profils axiaux de vitesse – Modèle 2D	50
2.11	Profils radiaux de vitesse – Modèle 2D	51
2.12	Comparaison des modèles 1D et 2D	51
2.13	Zones de calcul des différents termes des équations de conservation de quan- tité de mouvement	54
2.14	Représentation d'un volume de contrôle	56
2.15	Profils de vitesses radiales et axiales obtenus par la méthode des volumes finis – Profil de porosité de Cohen et Metzner – $Re_p=200$	58

2.16	Profils de pression simulés en écoulement de liquide seul - $Re_p = 200 - \varepsilon$ de Cohen et Metzner	58
2.17	Résultats du modèle piston : $Sh \cdot Sc^{-1/3}$ vs Re_p	63
2.18	Résultats du modèle piston : $Sh \cdot Sc^{-0,5}$ vs Re_p	63
2.19	Modèle de transfert de matière à deux zones	66
2.20	Comparaison des calculs effectués avec différents maillages	67
2.21	Discrétisation de la variable de position radiale ρ	67
2.22	Modèle de transfert de matière 1D complet	68
3.1	Pression capillaire P_c en fonction de la saturation de liquide pour notre système	75
3.2	Propagation du front de saturation	80
3.3	Profil radial de saturation - Porosité de Vortmeyer et Schuster (1983) - $L = 8,1 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ - $G = 0,14 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$	81
3.4	Comparaison des pertes de charges calculées et expérimentales	81
4.1	Signaux mesurés à l'aide de microélectrodes au sein du lit - Ecoulement monophasique de liquide	86
4.2	Moyenne des signaux	87
4.3	Ecart type des signaux σ	87
4.4	Facteur de dissymétrie \mathcal{D}	87
4.5	Facteur d'aplatissement \mathcal{F}	87
4.6	Taux de fluctuation	88
4.7	Gradients de vitesse moyens	89
4.8	Spectres de puissance des signaux pour divers nombres de Reynolds Re_p	90
4.9	Spectres de puissance des gradients de vitesse pour divers nombres de Reynolds	92
4.10	Fonctions d'autocorrélation des signaux	94
4.11	Temps de cohérence des signaux τ_c en fonction du débit de liquide L	95
4.12	Temps de cohérence intégraux des signaux T_c en fonction du débit de liquide L	96
4.13	Dimensions caractéristiques calculées à partir des fonctions de corrélation des signaux - Sonde 2	97
4.14	Dimensions caractéristiques des structures calculées à partir des fonctions de corrélation du gradient de vitesse - Sonde 2	97
4.15	Détail de deux fonctions de corrélation : détermination de τ_c	98
4.16	Fonctions d'intercorrélation des signaux de courant	100
4.17	Coefficient de corrélation des sondes 1 et 2	101
4.18	Coefficient de corrélation des sondes 2 et 4	101
4.19	Exemple de fonction de détection - $L = 55 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$	102
4.20	Nombre d'évènements détectés selon le seuil de détection k	103
4.21	Distribution des âges expérimentale et modèle exponentiel : $k = 1, a = 3T_c$	104
4.22	Temps de renouvellement t_0 en fonction du débit liquide L pour différentes valeurs du seuil k	104
4.23	Variation du gradient de vitesse en fonction du temps de renouvellement	105

4.24	Comparaison des valeurs calculées de S à différents k aux valeurs expérimentales	105
5.1	Densité spectrales de puissance \mathcal{S}_{PP} des signaux de pression en paroi	111
5.2	Maximum de densité spectrale de puissance des signaux de pression	112
5.3	Transition de régime ruisselant-pulsé	112
5.4	Exemple de signaux obtenus par les capteurs de pression en paroi	113
5.5	Fréquences de pulsation pour de faibles débits de liquide	114
5.6	Fréquences de pulsation pour de grands débits de liquide	114
5.7	Relation entre la fréquence de pulsation normée et le rapport des nombres de Reynolds intersticiels	115
5.8	Vitesses des pulsations	116
5.9	Relation entre la vitesse des pulsations normée et le rapport des nombres de Reynolds intersticiels du liquide et du gaz	117
5.10	Exemples de signaux transmis par les microélectrodes	118
5.11	Moyennes des signaux	119
5.12	Écarts types des signaux	119
5.13	Taux de fluctuation des signaux des microélectrodes	120
5.14	Spectres de puissance des signaux – Sonde 2	122
5.15	Coefficient de corrélation des signaux – Sondes 1 et 2	123
B.1	Convertisseur courant-tension : schéma détaillé	138
C.1	Courbe de titrage	140
C.2	Courbe d'étalonnage	140

Liste des tableaux

1.1	Etalonnage des sondes électrochimiques	20
1.2	Caractéristiques des fluides utilisés	22
2.1	Porosités à l'infini et en $r = 0$ pour différents modèles	35
2.2	Distance d'établissement de l'écoulement exprimée en diamètres de particules	52
2.3	Importance des différents termes de l'équation (2.8) sur tout le réacteur . .	53
2.4	Importance des différents termes de l'équation (2.8) par zone	54

Remerciements

Je voudrais en premier lieu remercier M. Hans-Günther LINTZ, directeur du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, pour m'y avoir accueilli.

J'ai été encadré au cours de ce travail par M. Abderrazak LATIFI. Pour tout ce qu'il m'a apporté, à la fois de par sa compétence scientifique et son esprit de chercheur, mais aussi sur le plan humain, qu'il trouve ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je veux aussi exprimer ma gratitude à M. Noël MIDOUX tout d'abord pour avoir accepté de co-encadrer ce travail, mais aussi et surtout pour ses conseils, sa pléthore d'idées et sa gentillesse. Lui aussi a su me montrer ce que être un chercheur signifie vraiment, et je l'en remercie.

J'adresse mes sincères remerciements à Mme Dominique TOYE et MM. Jacques COMITI, Claude DESLOUIS et Gérard VALENTIN pour avoir accepté d'évaluer ce travail. Gérard VALENTIN m'a par ailleurs donné de précieux conseils, en particulier sur les techniques électrochimiques, et je lui en suis reconnaissant.

Certains des résultats présentés ici sont issus du travail de microthèse de Fabien DOUSSON, que je tiens à remercier. D'autre part, j'ai eu la chance de bénéficier des collaborations fructueuses de Henda ZOGHLAMI et d'Azzedine SOUADNIA. Qu'ils en soient ici remerciés.

Sans l'aide précieuse des services Atelier et EMI du LSGC, je doute que ce travail aurait abouti ; je voudrais ici leur exprimer ma gratitude. Je tiens en particulier à remercier Claude GRANDJEAN, à la fois pour l'aide technique qu'il m'a apporté mais aussi pour sa gentillesse qui fit un plaisir de chacun de mes passages dans son bureau.

Je voudrais remercier tous les membres des groupes TASC et TREP, permanents et thésards, qui ont fait que mon séjour au laboratoire fut particulièrement agréable ; citons Gabriel, Souhila, François, Caroline, Sabine, Christophe V., Israël, pour le TREP, et Mehdi, Frantz, Bruno, Ben, Jean-Marc, Mauricio, Karima, Jean-Pierre, Hervé, Marie-Noëlle et Mélika pour le TASC. Certains d'entre eux m'ont aidé au cours de mes travaux, me faisant bénéficier de leurs compétences et de leur savoir-faire ; ils ont été l'illustration du fait que la recherche est une affaire d'équipe et non d'individus. Je leur en suis très reconnaissant.

Je remercie particulièrement mes collègues et néanmoins amis Céline et Mohamed, qui m'ont accompagné tout au long de cette thèse. De même, merci à Gacem, Guillaume, Rachid ¹, Nancy, Aude, Julien, Laurent, Matthieu C., Matthieu S. et Renaud pour leur amitié et leur soutien. Je remercie enfin mes amis Cyril, Sébastien et Fabien, pour trop de choses pour que je puisse les citer.

Pour finir, je voudrais remercier mes parents, mon grand-père et mon frère pour leur amour et la confiance qu'ils m'ont toujours manifestée. J'espère qu'ils sont fiers de moi.

¹Et rappelons au passage qu'une base d'ondelettes engendre bien l'espace de Hardy.

Nomenclature

Symboles latins

A, B	: coefficients de l'équation de perte de charge	
\mathcal{A}_{12}	: surface de l'interface 1-2 comprise dans le volume \mathcal{V}	m^2
c	: concentration	$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$
C_0	: concentration au sein de la phase liquide	$\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$
C_{xx}	: fonction d'autocorrélation du signal x	$[\text{Unité de } x]^2$
C_{xy}	: fonction d'intercorrélacion des signaux x et y	$[\text{Unité de } x]^2$
\mathcal{D}	: coefficient de diffusion moléculaire	$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$
\mathbb{D}_r	: coefficient de dispersion radiale	$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$
\mathbb{D}_z	: coefficient de dispersion axiale	$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$
$\underline{\underline{\mathbf{D}}}$: tenseur de dispersion	$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$
\mathcal{D}	: facteur de dissymétrie	-
D_c	: diamètre de la colonne	m
d_e	: diamètre de l'électrode	m
d_{eq}	: diamètre de garnissage équivalent	m
d_{is}	: distance inter-sondes	m
d_M	: dimension des plus grandes structures tourbillonnaires	m
d_m	: dimension moyenne des structures tourbillonnaires	m
d_p	: diamètre de particule	m
d_S	: rapport d_p/D_c	-
\mathbf{F}_f	: force exercée sur le fluide F par unité de volume de réacteur	N
\mathcal{F}	: Faraday	96500 C
\mathcal{F}	: facteur d'aplatissement	
f_p	: fréquence de pulsation	Hz
G	: débit spécifique du gaz	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$
H	: fonction de transfert électrochimique	
i	: densité de courant	$\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$
	: indice des nœuds du maillage radial (chap.2 et 3)	-
I	: intensité	A
j	: indice des nœuds du maillage axial (chap. 2 et 3)	-
J_n	: fonction de Bessel modifiées de première espèce d'ordre n	
\mathcal{J}	: fonction de Leverett	
k_d	: coefficient de transfert de matière en paroi	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
K	: perméabilité	m^2

l	: échelle de longueur microscopique	m
l_0	: longueur définie dans l'équation (5.12)	0,3 m
L	: débit spécifique de liquide	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$
L_c	: longueur de colonne	m
L_e	: longueur de la macro-électrode	m
L_s	: distance entre les sondes pariétales de pression	m
M_n	: moment d'ordre n d'une distribution	
n_ρ	: nombre de points de maillage sur la coordonnée radiale	-
n_ξ	: nombre de points de maillage sur la coordonnée axiale	-
P	: pression	Pa
	: pression moyenne (chap. 2)	
P_C	: pression capillaire	Pa
P_f	: pression intrinsèque du fluide	Pa
Q	: débit adimensionnel de fluide	-
$\underline{\underline{\mathbf{R}}}_f$: tenseur de pseudo-turbulence du fluide f	
R_c	: rayon de la colonne	m
R^*	: $= \frac{R_c}{d_p}$, rayon adimensionnel	-
S	: gradient pariétal de vitesse	s^{-1}
S_k	: surface de la face k ($k \in \{e, n, w, s\}$)	m^2
\mathcal{S}_{xx}	: densité spectrale de puissance du signal x	
s	: surface spécifique du garnissage	m^2
s_f	: saturation (volume de f par unité de volume vide)	-
$s_{r,L}$: saturation statique (irréductible) de la phase liquide	-
t	: temps	s
T_C	: temps de cohérence intégral	s
u	: vitesse dimensionnelle	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
U	: vitesse adimensionnelle	-
V_p	: vitesses de pulsations	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
\mathcal{V}	: volume de prise de moyenne	m^3
W_i	: paramètres de Grosser et coll. - équation (5.2)	-
x	: $= \frac{c}{c_0}$, concentration adimensionnelle	-
y	: coordonnée perpendiculaire à l'électrode (chap. 1)	m
Y_n	: fonction de Bessel modifiée de seconde espèce d'ordre n	-
z	: coordonnée axiale	m

Symboles grecs

α	: $= \frac{R_0^2}{\mu u_0} \frac{\Delta P}{L_c}$, perte de pression linéique moyenne adimensionnelle (chap. 2)	-
α'	: $= \frac{R_0^2}{\mu u_0} \frac{\Delta P_f}{L_c}$, perte de charge adimensionnelle (chap. 2)	-
δ_Z	: critère de convergence de la quantité Z	-
ε	: porosité (rapport volume vide/volume de réacteur)	-
ε_x	: critère de convergence portant sur la variable x	-
λ	: $= \sqrt{\frac{\rho_L \rho_G}{\rho_{\text{eau}} \rho_{\text{air}}}}$ paramètre des cartes de transition de régime	-

	: longueur d'onde (chap. 1 et annexe C)	m
λ^*	: $= \sqrt{\frac{\rho_L \rho_G}{\rho^* \rho_{eau}}}$, paramètre λ modifié par Larachi (1991)	-
Θ_x	: taux de fluctuation de x	-
μ_f	: viscosité dynamique de la phase f	Pa·s
μ_{eff}	: viscosité effective (terme de Brinkman)	Pa·s
ν_f	: viscosité cinématique de la phase f	$^2\text{m/s}$
ρ	: coordonnée radiale adimensionnelle ($= r/R$)	-
ρ_f	: masse volumique de la phase f	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$
ρ^*	: masse volumique de l'air à 273,15 K sous 1 bar	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$
σ	: tension superficielle	$\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$
Σ	: pulsation adimensionnelle	-
τ	: tortuosité du milieu poreux	m
$\underline{\underline{\tau}}_f$: tenseur de contraintes visqueuses du fluide f	
τ_C	: temps de cohérence	s
τ_i	: retard du signal (temps d'intercorrélation)	s
ϕ	: terme source de quantité de mouvement dû au milieu poreux (chap. 2)	
Φ	: terme source adimensionnel (chap. 2)	-
	: paramètre des cartes de transition de régime	-
ξ	: coordonnée axiale adimensionnelle ($= z/L_c$)	-
ξ'	: coordonnée axiale adimensionnelle ($= z/L_e$)	-
ψ	: fonction de courant	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
	: paramètre des cartes de transition de régimes	-
Ψ	: $= \psi/(R_c^2 u_0)$, fonction de courant adimensionnelle	-
ω	: $= \frac{\partial u_r}{\partial z} - \frac{\partial u_z}{\partial r}$, vorticité	s^{-1}
Ω	: $= (R_c \omega)/u_0$, vorticité adimensionnelle	-

Nombres adimensionnels

$E\ddot{o}$: nombre d'Eötvos	$\frac{\rho_f d_p g}{\rho^2 g d_{eq}^3 \varepsilon^3}$
Ga^*	: nombre de Galilée modifié	$\frac{u_0 R_c^2}{\mathbb{D}_r L_e}$
Pe_r	: nombre de Péclet radial	$\frac{u_0 L_e}{\mathbb{D}_z}$
Pe_z	: nombre de Péclet axial	$\frac{\rho_f u d_{eq}}{\mu_f (1 - \varepsilon)}$
Re^*	: nombre de Reynolds modifié	$\frac{\rho_f u_0 d_p}{\mu_f \varepsilon}$
Re_i	: nombre de Reynolds interstitiel	$\frac{\rho_f u d_p}{\mu}$
Re_p	: nombre de Reynolds de particule	$\frac{\nu_f \mu}{\mathbb{D}}$
Sc	: nombre de Schmidt	$\frac{k_d D_c}{\mathbb{D}}$
Sh	: nombre de Sherwood	$\sqrt{\frac{\Delta P_L}{\Delta P_G}}$
χ_L	: paramètre de Lockhart-Martinelli pour le fluide F	

Φ_F : perte de charge diphasique adimensionnelle par rapport au fluide F $\sqrt{\frac{\Delta P_{LG}}{\Delta P_F}}$

Indices

c	: au centre
F	: relatif au fluide
G	: relatif au gaz
i	: interstitiel
L	: relatif au liquide
p	: à la paroi
r	: radial
T	: totale
z	: axial
E, S, N, W, P	: position des centres des volumes de contrôle
e, s, n, w	: position des faces des volumes de contrôle

Exposants

tr	: de transition
\tilde{x}	: valeur fluctuante de x
	: estimation de x (chapitre 3)
\bar{x}	: valeur moyenne de x
\hat{x}	: moyenne à court terme de x (méthode VITA)
$\langle x \rangle^f$: moyenne intrinsèque sur la phase f

Introduction générale

Tous les hommes désirent connaître par nature

ARISTOTE – *Métaphysique A,1*

La mise en contact des différentes phases contenant réactifs et catalyseurs est un aspect essentiel du Génie Chimique. Lorsque l'on est en présence de phases de natures différentes, il convient d'étudier quel type de contacteur est le plus adapté pour la réaction considérée. Pour l'établissement d'un contact fluide-solide, on peut distinguer quatre familles de réacteurs :

- les réacteurs agités ;
- les colonnes à bulles à solide suspendu ;
- les réacteurs à lit fluidisé ;
- les réacteurs à lit fixe.

Ce travail a porté sur un type particulier de réacteur à lit fixe : le réacteur catalytique à lit fixe arrosé à co-courant vers le bas de gaz et de liquide (RCLFA) (*trickle-bed*). Le cas de l'écoulement de liquide seul dans le milieu poreux sera également étudié.

Un RCLFA est un lit de particules disposées dans un cylindre vertical, sur lequel s'écoulent conjointement vers le bas les phases liquide et gaz. Les particules constituent le garnissage et peuvent être de tailles et de formes diverses, poreuses ou non. L'avantage de ce type de procédé est une conversion élevée, une bonne sélectivité, la possibilité d'opérer à de très fortes pressions. L'inconvénient majeur est la faible conductivité thermique : dans le cas de réactions fortement exothermiques, il peut se former des points chauds, le risque principal étant alors l'emballement de la réaction. On retiendra de plus que, contrairement aux réacteurs à contre-courant, les réacteurs à co-courant ne présentent pas de point d'engorgement et peuvent donc opérer à des débits de fluide élevés.

Les RCLFA sont utilisés pour un grand nombre d'applications industrielles (Gianetto et Specchia, 1992), citons :

- l'hydrodésulfuration des gazoles ;
- l'hydrocraquage catalytique ;
- l'hydrodémétallation ;
- diverses réactions d'hydrogénation, hydratations, oxydations ;
- le traitement des eaux usées (lits bactériens).

Les conditions opératoires et les caractéristiques géométriques de ces réacteurs peuvent être extrêmement diverses. Il est donc difficile de fournir des relations générales, applicables dans tous les domaines d'utilisation.

Le but premier de l'étude des RCLFA était de fournir des relations permettant leur dimensionnement. Ainsi, les travaux sur le sujet ont tout d'abord concerné les relations entre les paramètres opératoires et les caractéristiques géométriques, et des grandeurs comme la perte de charge, la saturation globale et les coefficients de transfert de chaleur et de matière. L'intérêt s'est ensuite porté sur les problèmes de distribution des fluides dans les colonnes de grande taille, problèmes qui restent d'actualité.

D'un autre côté, ces dernières années ont vu un accroissement considérable des puissances de calcul, doublé d'une diminution des coûts des moyens informatiques. Ceci a ouvert la voie à une modélisation de plus en plus complexe des phénomènes de transport dans les réacteurs chimiques.

Ce travail a eu pour premier dessein de mieux comprendre les écoulements (liquide et gaz-liquide) en milieu poreux grâce à des mesures de gradients de vitesse au sein du réacteur, la connaissance ainsi obtenue pouvant ensuite être intégrée dans des modèles numériques, permettant une simulation plus réaliste des écoulements et du transfert de matière. L'objectif final est le dimensionnement et la maîtrise du fonctionnement des RCLFA.

La difficulté de mise en œuvre des techniques de mesure a nécessité une réorganisation de ce programme. Ainsi, nous nous sommes en premier lieu intéressés à la modélisation et la simulation des écoulements et du transfert de matière, en utilisant les résultats obtenus dans des travaux antérieurs (Naderifar, 1995). Ce n'est qu'ensuite que nous avons pu mettre en service un dispositif de mesure par sondes électrochimiques, qui a conduit à des résultats intéressants dans le cas des écoulements de liquide seul. Afin de compléter l'étude, d'autres mesures (capteurs pariétaux de pression) ont été utilisées dans le cas d'écoulements de gaz et de liquide.

Modélisation et simulation numérique des écoulements

Dans un article récent, Sundaresan (2000) dresse le panorama des grandes perspectives du génie chimique pour les dix années à venir. Un des points clé semble en être la simulation des phénomènes de transfert dans les écoulements triphasiques gaz-liquide-solide, avec ou sans réaction chimique.

La puissance des calculateurs augmente régulièrement, et les techniques numériques s'affinent. On est donc en droit de penser qu'il sera un jour possible de modéliser l'écoulement de fluides dans un milieu poreux à partir des seules équations de conservation. La difficulté majeure réside cependant dans la connaissance des phénomènes mis en jeu, en particulier dans le cas de l'écoulement conjoint de gaz et de liquide.

Nous avons réalisé la simulation des écoulements et du transfert de matière dans le cas d'un écoulement de liquide, en utilisant différents modèles de complexité croissante. Nous avons également effectué la simulation d'écoulements gaz-liquide pour de faibles débits de gaz et de liquide. Les méthodes numériques utilisées seront particulièrement détaillées.

Mesures locales

Dans toute opération de mesure, il faut en premier lieu éviter que l'instrument de mesure ne perturbe la quantité mesurée; si ceci est relativement simple dans le cas de

grandeurs globales (pertes de charges, températures de paroi, ...), il en va autrement lorsque l'on cherche à mesurer localement les phénomènes (vitesses, pression, transfert de chaleur...). Ainsi, l'obtention de grandeurs locales peut s'avérer d'autant plus délicate que la géométrie particulière d'un milieu poreux ne facilite pas l'insertion de sondes ou la mesure optique.

Nous avons mesuré les gradients de vitesse à la surface du garnissage d'un réacteur à lit fixe, en utilisant une technique électrochimique, dont l'avantage majeur est de ne perturber que très peu l'écoulement. L'originalité de ce travail a consisté à effectuer cette mesure au sein du lit fixe, en utilisant 4 sondes réparties dans un pore.

Cette méthode a également été appliquée, mais avec peu de succès, aux écoulements gaz-liquide. Par ailleurs, ce type d'écoulement a été étudié en mesurant la pression à la paroi du réacteur. Ces mesures ont fourni des données intéressantes sur l'hydrodynamique.

Le but de ces mesures est de comprendre l'écoulement au sein d'un pore. Cette compréhension permettra notamment de mieux caractériser les interactions gaz-liquide et de déterminer les conditions aux limites appropriées à la simulation des écoulements locaux.

Plan de l'étude

Le premier chapitre décrit le montage expérimental utilisé, et présente de façon plus approfondie la méthode de mesure électrochimique tant du point de vue théorique que technique. Les différentes méthodes de traitement du signal dont on a fait usage pour l'analyse des résultats sont également détaillées.

Le document est ensuite divisé en deux grandes parties. La première concerne la modélisation et de la simulation numérique des phénomènes de transport, et comprend les chapitres 2 et 3.

Le deuxième chapitre traite de l'écoulement monophasique de liquide, en proposant différents modèles de complexité croissante. Il traite également de la simulation des transferts de matière entre le liquide et la paroi. Un modèle pour les écoulements gaz-liquide aux faibles débits est présenté dans le troisième chapitre. On y détaille en particulier les méthodes numériques utilisées pour résoudre les différents problèmes inhérents au modèle utilisé.

La seconde partie de ce document contient les résultats expérimentaux, et comprend également deux chapitres.

On trouvera dans le quatrième chapitre les différents résultats obtenus en écoulement de liquide seul. La nature de l'écoulement et sa caractérisation y sont particulièrement étudiées. Le cinquième (et dernier) chapitre présente les différents résultats obtenus en écoulement gaz-liquide, pour les mesures locales de pression et les microsondes électrochimiques.

Chapitre 1

Dispositif expérimental, techniques de mesure et traitement du signal

Dans ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental utilisé au cours de cette étude, ainsi que les méthodes de mesure et traitement du signal. Le dispositif de mesure utilisé, à savoir les microélectrodes implantées au sein du lit fixe, est principalement détaillé, tant du point de vue théorique que technique.

1.1 Le réacteur

Le lit fixe utilisé est une colonne en PVC transparent d'un diamètre interne D_c de 5,67 cm, garnie de billes de verre d'un diamètre d_p égal à 5 mm. La porosité moyenne est déterminée à chaque remplissage, et sa valeur est de l'ordre de 0,39. La hauteur du garnissage L_c est de 1,63 m. Le schéma global de l'installation est présenté sur la figure (1.1).

Le débit de liquide est mesuré par une batterie de 3 rotamètres de gammes différentes, assurant une plage de mesure de 50 à 1600 lh^{-1} (en pratique, la pompe ne permet d'accéder qu'à des débits de l'ordre de 800 lh^{-1}). Les débits liquides spécifiques sont donc compris dans la gamme 5,5-88 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. A la sortie de la colonne, le liquide s'écoule dans un bac de stockage thermostaté (régulation de type « tout ou rien », assurée par un serpentin d'eau froide dont l'alimentation est commandée par un thermomètre à contact de mercure) et est recirculé.

Le débit de gaz est également mesuré par deux rotamètres. On peut atteindre, en pratique, des débits spécifiques d'environ 0,5 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, avec un débit minimum de 0,03 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. On dispose de deux manomètres pour la mesure de la pression du gaz au niveau des rotamètres. La température est mesurée à l'aide d'un thermocouple. Lorsque l'on travaille en écoulement gaz-liquide, la séparation des fluides s'effectue naturellement au niveau du bac de stockage ; on s'assure visuellement que le gaz n'est pas entraîné dans le circuit liquide.

La distribution de fluides en tête de réacteur est faite par un distributeur représenté sur la figure (1.2). Il est composé d'une plaque perforée (37 trous pour l'alimentation liquide) traversée par 4 trous (de 3 mm de diamètre) pour l'alimentation gaz. On évite

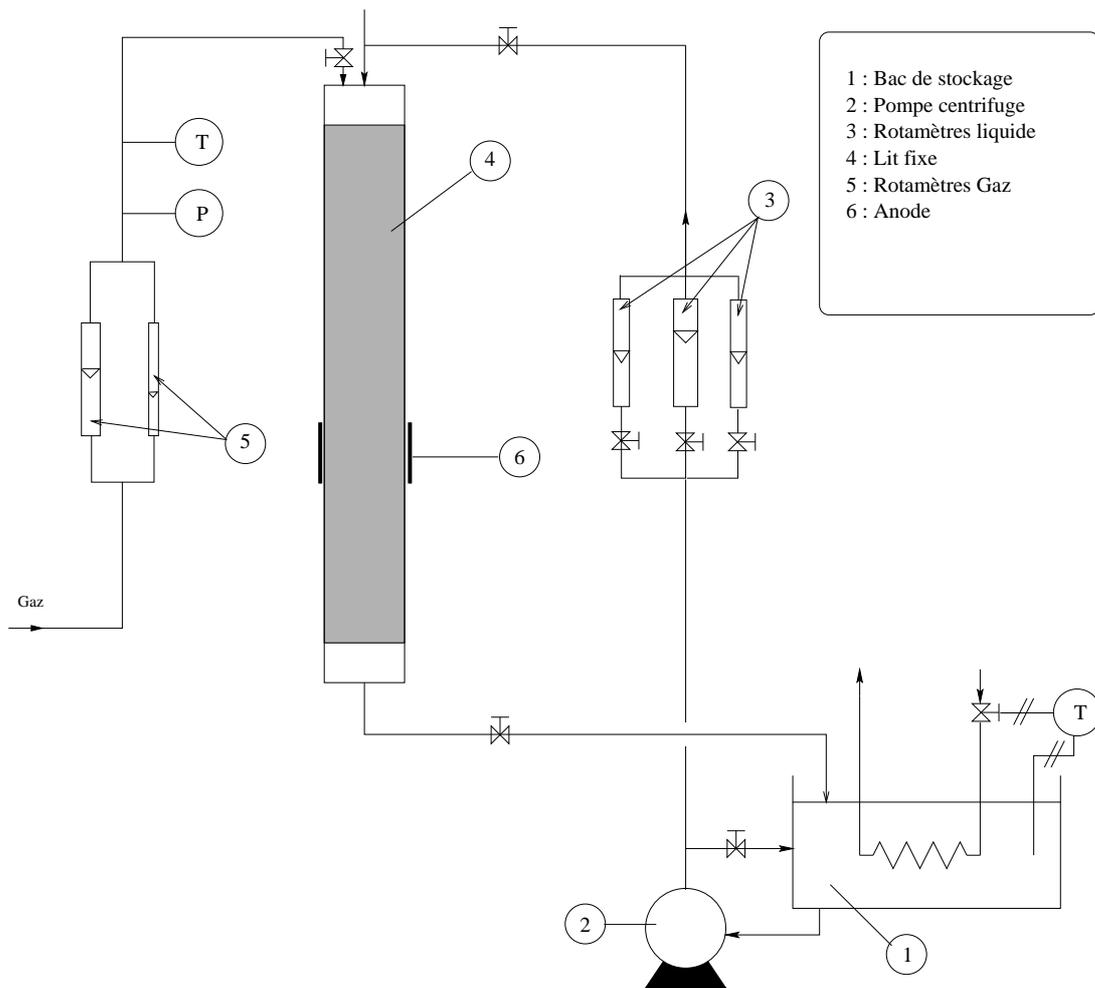


FIG. 1.1 – Dispositif expérimental

ainsi l'écoulement simultané du gaz et du liquide par les mêmes trous, ce qui induirait des pulsations. Nous avons utilisé deux distributeurs qui diffèrent par le diamètre des orifices de distribution de liquide (respectivement 0,8 mm et 1 mm). Le diamètre des orifices a été calculé afin d'obtenir une distribution uniforme aux faibles débits (on a vérifié que la perte de charge aux faibles débits correspondait à une hauteur de liquide suffisante au dessus de la plaque de distribution). L'utilisation d'un distributeur à trous de 1 mm permet de limiter la perte de charge aux forts débits.

Certaines des mesures utilisées dans ce travail proviennent des travaux de Naderifar (1995); son dispositif expérimental était similaire au nôtre, avec $D_c = 0,05$ m et $L_c = 1,3$ m, la porosité moyenne $\bar{\epsilon}$ restant également voisine de 0,39.

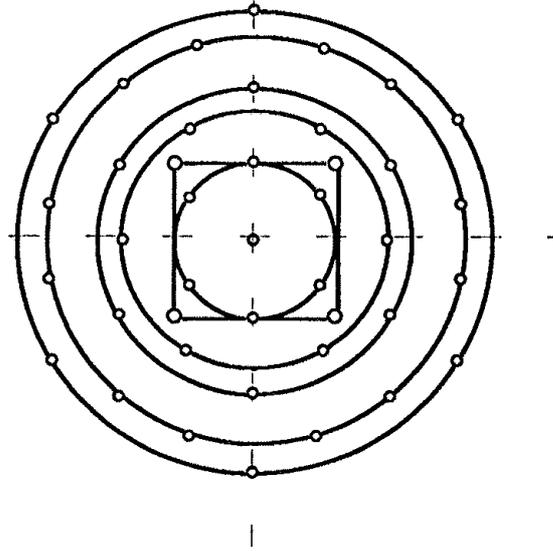


FIG. 1.2 – Détail du distributeur de fluides

1.2 Mesure de pression

Nous avons mesuré la perte de charge globale à l'aide d'un capteur de pression différentiel (KELLER, PD-23, 0-2 bars) connecté par des flexibles à chaque extrémité de la colonne. On s'est assuré que les flexibles étaient exempts de bulles d'air susceptibles de fausser la mesure. En écoulement monophasique de liquide, la pression est fournie directement par le capteur (la correction hydrostatique est la même dans les flexibles et dans la colonne). Par contre, dans le cas d'un écoulement gaz-liquide, il faut corriger la mesure par la différence des pressions hydrostatiques. La perte de charge totale est alors fournie par :

$$\Delta P_T = \Delta P_{\text{mes}} - \rho_{\text{eau}} g L_c \quad (1.1)$$

Il est intéressant de découpler les pertes de charges dues aux frottements ΔP^* de celles dues à la différence de charge hydrostatique. Nous devons alors considérer deux cas :

1. La phase gazeuse est continue du haut en bas de la colonne (cas d'un régime de faibles interactions) : $\Delta P^* = \Delta P_T + \rho_g g L_c$
2. La phase gazeuse est dispersée dans la phase liquide : $\Delta P^* = \Delta P_T + (s_L \rho_L + (1 - s_L) \rho_G) g L_c$

où s_L est la saturation liquide moyenne du système (volume occupé par le liquide par rapport au volume vide).

On a également mesuré la pression absolue (référence fixe interne au capteur) locale à la paroi du réacteur. Pour cela, deux capteurs de pression absolue (KELLER, PAA-23, 0-2 bars) ont été montés dans un élément de colonne dans lequel l'orifice de mesure affleure la paroi interne du réacteur – figure (1.3). Ces capteurs ont une précision de 200 Pa et un temps de réponse de 10^{-3} s. Trois paires de piquages ont été réalisées, avec un écartement de 5, 10 et 15 cm. Ces capteurs sont également reliés à un ordinateur de

type PC, par le biais d'une carte d'acquisition. Les capteurs présentent un volume mort entre la membrane et l'orifice affleurant (voir schéma (1.4)). Nous nous assurons que ce volume est exempt de bulles d'air avant de commencer les mesures. En effet, la présence de ces bulles filtre les signaux de faible amplitude (Larachi, 1991, p. 66). Le retard dû à la présence de ce volume a été négligé (dans la mesure où le liquide est seul présent à l'intérieur).

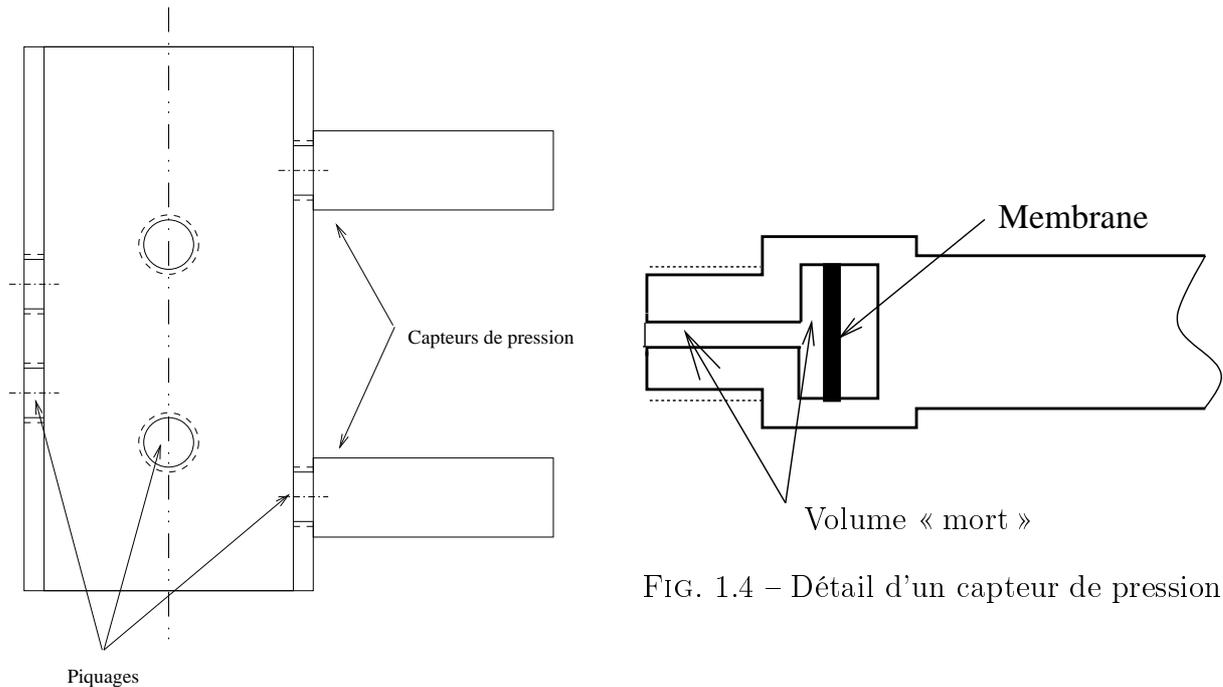


FIG. 1.3 – Positionnement des capteurs de pression

Le logiciel TESTPOINT a été utilisé pour toutes les acquisitions présentées dans ce travail. La carte d'acquisition dont nous disposons permet le multiplexage ; ainsi, il nous a été possible d'obtenir simultanément les signaux des deux sondes de pression en paroi ou des 4 sondes électrochimiques. Cependant, il a fallu mettre au point des routines spécifiques d'acquisition rapide, permettant à la fois des fréquences d'acquisition de l'ordre du kHz tout en maintenant un délai entre les commutations de voies qui soit suffisant pour que la mesure s'effectue correctement, et suffisamment bref pour ne pas causer de décalage visible.

1.3 Micro-électrodes

L'objectif est ici d'étudier l'hydrodynamique à l'intérieur d'un pore du milieu poreux. À l'aide de microélectrodes implantées dans le sein du lit, nous pouvons mesurer les gradients de vitesse moyens et leurs fluctuations au sein du pore. Cette méthode a pour avantage d'être très peu intrusive, et ne perturbe donc pas l'écoulement. Elle donne de plus une mesure à l'échelle microscopique, ce qui est intéressant dans le cas des milieux

poreux, où ce type de mesures est délicat à obtenir. Elle présente cependant l'inconvénient de ne pas donner accès directement aux grandeurs « utiles » (p.ex. vitesse), et de ne pas être utilisable dans certains des milieux utilisés industriellement (hydrocarbures, gaz...).

La technique des microélectrodes en paroi inerte est utilisée pour la détermination des gradients de vitesse sur une paroi solide. Elle a d'abord été utilisée pour des mesures en écoulement monophasique de liquide en conduite, puis Jolls et Hanratty (1966) ont utilisé ce type de sondes pour déterminer les transitions de régime en écoulement monophasique de liquide en milieu poreux, à l'aide de plusieurs sondes insérées dans un élément de garnissage. Plus récemment, Latifi (1988), Rode (1992) et Naderifar (1995) ont utilisé cette technique pour des mesures en écoulement liquide et gaz-liquide, mais se sont restreints à l'analyse des gradients de vitesse et du transfert de matière à la paroi du réacteur. Enfin, Seguin (1997) a réalisé une étude en écoulement monophasique de liquide, en utilisant une électrode insérée au sein de milieux poreux de différentes natures.

1.3.1 Principe général et fluides utilisés

La technique électrochimique met en œuvre une réaction dont la vitesse est contrôlée par le transfert de matière sur l'électrode de mesure, la contre-électrode n'étant pas limitée. Il faut donc utiliser un couple d'ions réagissant rapidement sur la surface considérée, afin de pouvoir se placer à un potentiel correspondant au palier de diffusion. Le courant I mesuré correspond alors au courant limite diffusionnel.

Un bon nombre de couples rédox et d'électrodes associées sont proposés par Naderifar (1995). Comme lui, nous utiliserons la réaction de réduction de l'hexacyanoferrate III de potassium en hexacyanoferrate II sur électrode de platine. Cette méthode utilisant de faibles concentrations d'hexacyanoferrate II et III (respectivement 1 et 10 mol·m⁻³), il est nécessaire d'utiliser une solution électrolytique. Nous avons travaillé avec une solution de soude à 500 mol·m⁻³.

1.3.2 Quelques éléments de théorie sur les micro-électrodes

Nous allons dans ce qui suit présenter rapidement les équations régissant le transfert de matière sur une électrode satisfaisant certaines hypothèses, ainsi que leur résolution. Ce développement aboutira aux relations entre la mesure du courant limite I_{lim} et le gradient de vitesse sur l'électrode. Les calculs sont effectués pour une électrode rectangulaire, de largeur l_e faible devant sa longueur.

Si on néglige les phénomènes de convection naturelle et de migration des ions dans un champ électrique, on peut décrire le transfert de matière local au dessus d'une électrode insérée dans une paroi inerte par l'équation (1.2) :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) c = \mathcal{D} \nabla^2 c \quad (1.2)$$

Pour un système bidimensionnel, les conditions aux limites associées sont (voir figure (1.5)) :

$$\lim_{y \rightarrow \infty} c(y) = c_0 \quad (1.3)$$

$$c(y = 0) = 0 \quad \text{sur l'électrode} \quad (1.4)$$

$$\left. \frac{\partial c}{\partial y} \right|_{y=0} = 0 \quad \text{sur la paroi inerte} \quad (1.5)$$

La condition (1.4) provient du fait que l'on se place à un potentiel correspondant au palier de diffusion. La condition (1.5) découle de ce que la réaction n'a lieu que sur l'électrode.

Par ailleurs, se placer sur le palier de diffusion permet de connaître l'expression de la densité de courant qui traverse l'électrode :

$$i_L = \nu_e \mathcal{F} k_d C_L = \nu_e \mathcal{F} \mathcal{D} \frac{\partial c}{\partial y} \quad (1.6)$$

Dans le cas d'une sonde de très petite dimension, on peut estimer que les fluctuations de l'écoulement sont uniformes au dessus de la sonde et que la vitesse normale à la paroi est nulle.

Dans le cas d'un fluide présentant un grand nombre de Schmidt, la couche limite massique est totalement incluse dans la couche limite laminaire (voir figure (1.5)), son épaisseur pouvant être approximée par :

$$\delta_M = Sc^{-1/3} \delta_H \quad (1.7)$$

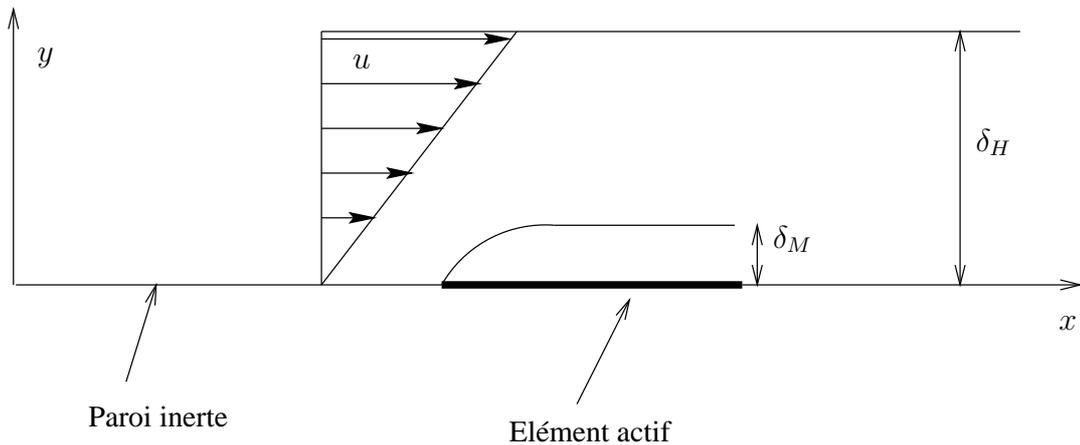


FIG. 1.5 – Schéma de principe de l'électrode en paroi inerte

On peut alors écrire pour chaque composante de la vitesse :

$$u_{x,z} = S_{x,z} y \quad (1.8)$$

Considérons maintenant un écoulement unidirectionnel suivant la direction x , et décomposons \mathbf{u} en termes moyens et transitoires sur chaque axe, soit $u = u_x = \bar{u} + \tilde{u} = \bar{S}y + \tilde{S}y$.

On suppose de plus que, compte tenu des échelles de temps concernées, la diffusion suivant la direction x est négligeable. On peut montrer (Ling, 1963) que cette hypothèse se vérifie si :

$$\frac{S_x l_e^2}{\mathcal{D}} \geq 5000 \quad (1.9)$$

L'équation (1.2) se réécrit, moyennant toutes ces hypothèses :

$$\bar{S}y \frac{\partial \bar{c}}{\partial x} = \mathcal{D} \frac{\partial^2 \bar{c}}{\partial y^2} \quad (1.10)$$

$$\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} + \bar{S}y \frac{\partial \tilde{c}}{\partial x} + \tilde{S}y \frac{\partial \tilde{c}}{\partial x} = \mathcal{D} \frac{\partial^2 \tilde{c}}{\partial y^2} \quad (1.11)$$

La résolution de (1.10) fournit \bar{c} au dessus de l'électrode (Latifi, 1988, p.154), soit :

$$\bar{c} = \frac{c_0}{\left(\frac{9}{4}\right)^{1/3} \Gamma\left(\frac{4}{3}\right)} \int_0^\zeta \exp\left(-\frac{4}{9}t^3\right) dt \quad (1.12)$$

$$\zeta = \left(\frac{\bar{S}}{4x\mathcal{D}}\right)^{1/3} y \quad (1.13)$$

A partir de (1.12) et de (1.6), on a :

$$\bar{k}_d = 0,807 \left(\frac{\mathcal{D}^2 \bar{S}}{l_e}\right)^{1/3} \quad (1.14)$$

Pour une électrode circulaire, on peut conserver cette relation en la considérant comme une électrode rectangulaire de longueur l_e telle que $\frac{1}{l_e^{1/3}} = \frac{4 \int_0^\pi \frac{d_e^2 \sin^2 \psi}{2(d_e \sin \psi)^{1/3}} d\psi}{\pi d_e^2}$ (Reiss et Hanratty, 1963). On a alors $l_e = 0,82d_e$.

$$\bar{k}_d = 0,862 \left(\frac{\mathcal{D}^2 \bar{S}}{d_e}\right)^{1/3} \quad (1.15)$$

La mesure du courant limite en paroi inerte donne donc accès au gradient pariétal de vitesse moyen.

Cependant, si l'on tient compte des fluctuations du signal, il faut corriger la relation (1.15) pour obtenir le gradient de vitesse moyen réel. Ceci, ainsi que l'étude de la relation entre les fluctuations de S et de k_d , est l'objet de la section suivante.

1.3.3 Reconstruction du signal de gradient de vitesse

L'objet de cette section est de présenter le traitement permettant de calculer le gradient de vitesse (et ses paramètres statistiques) à partir des signaux de courant limites mesurés sur chaque sonde.

Grandeurs statistiques

D'après les relation (1.6) et (1.15), on peut écrire $S = \alpha I^3$, si l'on se place en régime quasi-stationnaire, avec $\alpha = \frac{d_e}{0,640\mathcal{D}^2\mathcal{F}^3(A_e C_L)^3}$. En posant $S = \bar{S} + \tilde{S}$ et $I = \bar{I} + \tilde{I}$, il vient :

$$\bar{S} + \tilde{S} = \alpha \bar{I}^3 \left(1 + 3\frac{\tilde{I}}{\bar{I}} + 3\left(\frac{\tilde{I}}{\bar{I}}\right)^2 + \left(\frac{\tilde{I}}{\bar{I}}\right)^3 \right) \quad (1.16)$$

En moyennant (1.16), et comme $\overline{\tilde{S}} = 0$, on obtient :

$$\bar{S} = \alpha \bar{I}^3 \left(1 + 3\frac{\overline{\tilde{I}^2}}{\bar{I}^2} + \frac{\overline{\tilde{I}^3}}{\bar{I}^3} \right) \quad (1.17)$$

De même, l'écart type de S dans le cas pseudo-stationnaire s'exprime, en soustrayant (1.17) à (1.16), par :

$$\sigma_S \simeq 3\sigma_I \quad (1.18)$$

Analyse dynamique

Comme on l'a vu précédemment, le courant limite $I(t)$ dépend du gradient de vitesse S sur l'électrode par les relations (1.6) et (1.15). Cependant, puisque les phénomènes de transfert s'effectuent à vitesse finie, la réponse en courant à une variation de gradient est soumise à un filtrage décrit par la fonction de transfert $h(t)$; on peut donc écrire :

$$\tilde{I}(t) = h(t) * \tilde{S}(t) \quad (1.19)$$

soit dans le domaine fréquentiel :

$$TF(\tilde{I}(t)) = H(f) \cdot TF(\tilde{S}(t)) \quad (1.20)$$

Il est possible de réécrire 1.20 en utilisant les densités spectrales \mathcal{S}_{II} et \mathcal{S}_{SS} de I et S (respectivement), soit

$$\mathcal{S}_{II} = |H(f)|^2 \cdot \mathcal{S}_{SS} \quad (1.21)$$

Dans le cas stationnaire ($f \rightarrow 0$), on a $H = H(0)$ avec :

$$H(0) = \frac{1}{3} \frac{\bar{I}}{\bar{S}} \quad (1.22)$$

Différentes fonctions de transfert sont proposées dans la littérature, citons entre autres Nakoryakov et coll. (1983) et Deslouis et coll. (1993). Nous avons choisi d'utiliser les fonctions de Deslouis et coll., qui semblent mieux rendre compte du comportement des sondes dans la gamme des fréquences intermédiaires.

Selon Deslouis et coll., en posant $\Sigma = 2\pi f \left(\frac{d^2}{D S_x^2} \right)^{1/3}$, on obtient deux solutions pour H en fonction du domaine de fréquence (la fonction de transfert est normée par sa valeur à fréquence nulle).

$$1 \leq \Sigma \leq 6 \quad : \quad \left| \frac{H(\Sigma)}{H(0)} \right| = (1 + 0,049\Sigma^2 + 0,0006\Sigma^4)^{-0,5} \quad (1.23)$$

$$\Sigma > 6 \quad : \quad \left| \frac{H(\Sigma)}{H(0)} \right| = \frac{4,416}{\Sigma} \left(1 - \frac{1,7}{\sqrt{\Sigma}} + \frac{1,44}{\Sigma} \right)^{0,5} \quad (1.24)$$

La fonction de transfert normée $\frac{H(\Sigma)}{H(0)}$ est représentée sur la figure (1.6).

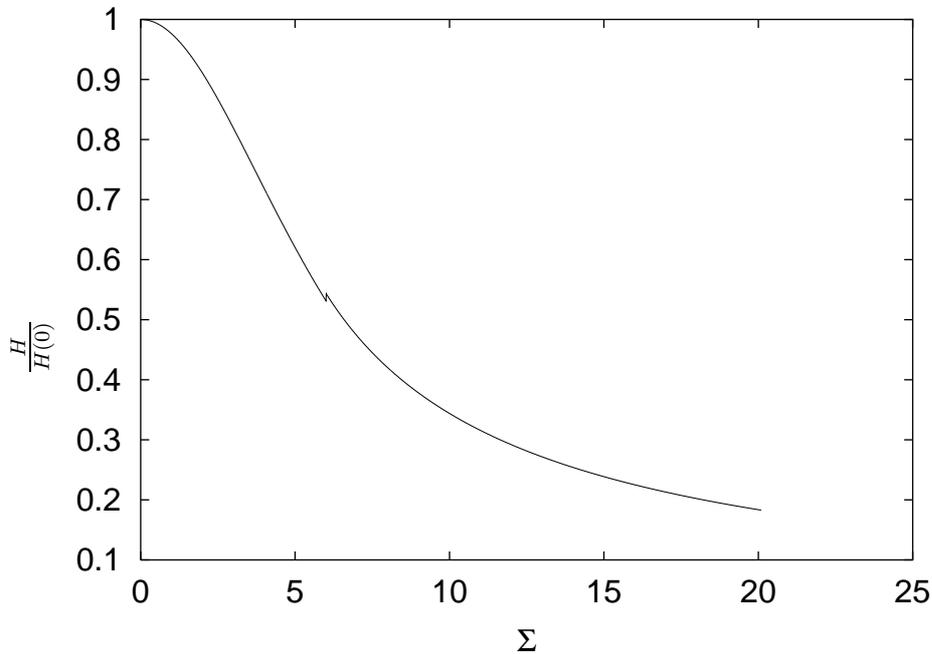


FIG. 1.6 – Fonction de transfert électrochimique H

La connaissance de ces fonctions de transfert permet donc de calculer le spectre \mathcal{S}_{SS} des gradients de vitesse par $\mathcal{S}_{SS} = \left| \frac{H(\Sigma)}{H(0)} \right|^2 \mathcal{S}_{II} |H(0)|^2$, ce qui autorise donc des calculs ultérieurs sur ces grandeurs.

1.3.4 Conception et implantation des électrodes

La contre-électrode (anode) est un tube en nickel d'une hauteur de 9 cm, qui constitue une partie de la colonne (colonne et anode sont de même diamètre interne). Elle est choisie de grande dimension devant les cathodes afin d'éviter la limitation diffusionnelle sur cette électrode; le rapport de surface entre anode et cathodes est de l'ordre de 4.10^4 .

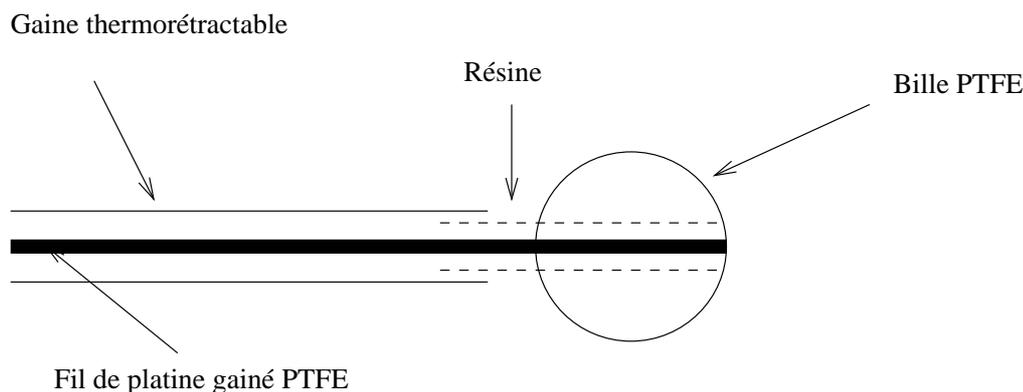


FIG. 1.7 – Schéma d'une sonde

Chaque micro-électrode est constituée d'un fil de platine gainé d'une couche très fine ($6\ \mu\text{m}$) de PTFE, d'un diamètre nominal de $250\ \mu\text{m}$, dont l'extrémité affleure à la surface d'une bille en PTFE. L'assemblage est réalisé à l'aide d'une résine de type époxy (fabriquée par UDD-Fim, ref. 622135) qui permet à la fois la fixation du fil sur la bille et l'étanchéité du système (bien qu'il n'y en ait pas vraiment besoin de ce point de vue, il est toujours possible que l'insertion du fil provoque des fissures dans la gaine de PTFE). La protection mécanique de la partie du fil dépassant de la bille est assurée par de la gaine thermorétractable. Le schéma d'une électrode est présenté sur la figure 1.7. L'électrode est ensuite polie et contrôlée par microscopie optique (figure (1.8)); ce contrôle grossier permet d'écarter les sondes visiblement défectueuses (mauvais positionnement longitudinal du fil, surface recouverte de résine...).

Chaque sonde est introduite dans un train de billes de polypropylène, ce qui permet d'amener le fil à l'extérieur de la colonne tout en respectant au maximum la structure du milieu poreux. Les électrodes sont ensuite assemblées par groupe de 4 (figure 1.9) (idéalement en un tétraèdre régulier) par un système de tenons et mortaises, afin d'effectuer les mesures dans une géométrie la plus proche possible de celle du milieu poreux.

On peut voir les différentes étapes du montage sur les figures 1.8 à 1.11.

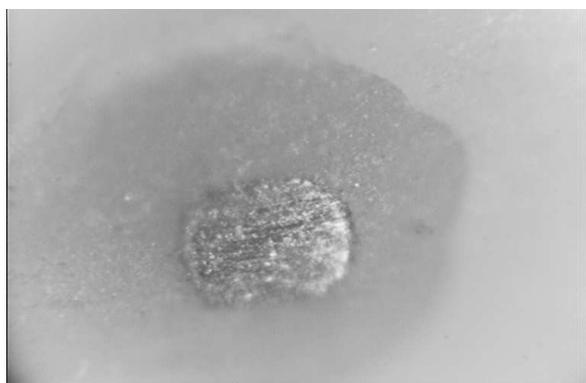


FIG. 1.8 – Photographie microscopique d'une sonde électrochimique

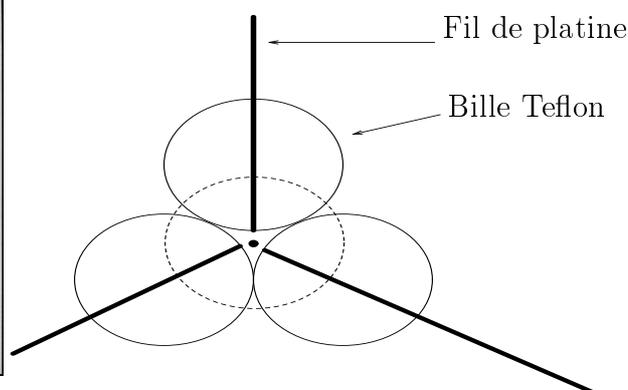


FIG. 1.9 – Assemblage des sondes

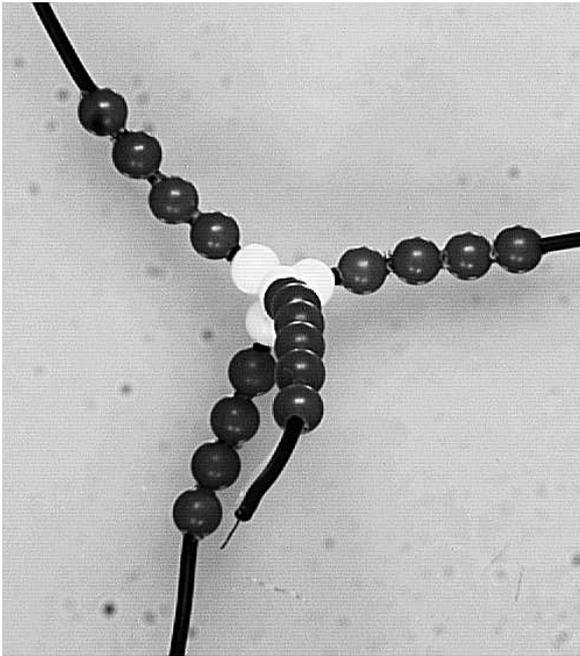


FIG. 1.10 – Sondes électrochimiques disposées en tétraèdre

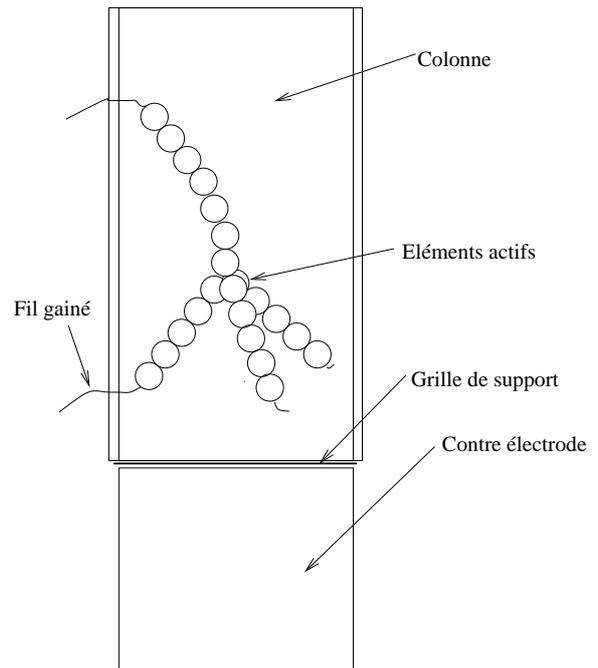


FIG. 1.11 – Positionnement des sondes dans la colonne

Un calcul rapide donne pour la distance entre deux sondes (sous réserve d'un positionnement parfait des billes porteuses) : $d_{is} = 0,183d_p$ soit $d_{is} = 0,915$ mm. Le positionnement est réalisé de telle sorte que 3 des billes composant le tétraèdre soient positionnées dans le plan perpendiculaire à l'écoulement, la quatrième étant posée sur les trois autres – figure (1.11). Les sondes sont dirigées vers le centre du pore, la sonde portée par la bille supérieure est donc dans le sillage de sa bille porteuse.

1.3.5 Appareillage électronique

Les courants limites obtenus sur l'électrode sont très faibles (de l'ordre de 100 nA) ; de plus, la carte d'acquisition dont nous disposons ne permet de mesurer que des tensions. C'est pourquoi il a fallu utiliser un convertisseur courant/tension capable d'amplifier fortement le signal reçu sans le déformer.

Le schéma de principe de cet appareil est présenté sur la figure (1.12) (voir l'annexe B pour plus de détails).

Si le principe est le même que celui de l'appareillage de Naderifar (1995), nous avons utilisé un filtre passe-bas afin de nous affranchir du bruit haute fréquence (supérieure à 1 kHz), d'où la présence d'un condensateur de 470 pF en parallèle avec la résistance de 1 k Ω . Nous avons vérifié que la présence de cette capacité n'induisait pas un temps d'établissement de la tension de polarisation trop important ; un délai de 3 ms a été jugé satisfaisant.

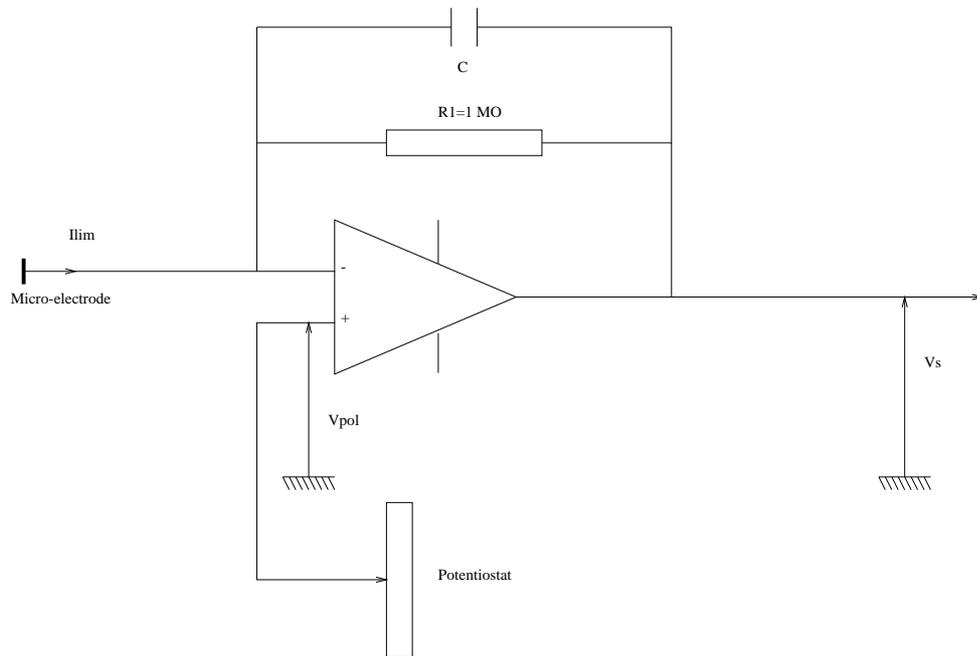


FIG. 1.12 – Schéma de principe du convertisseur courant/tension

1.3.6 Etalonnage des électrodes

Une incertitude subsiste quant à la dimension réelle des électrodes. En effet, le polissage peut très bien augmenter la surface active de l'électrode, modifiant par là le signal renvoyé pour un gradient de vitesse donné. C'est pourquoi nous avons mesuré le diamètre de chaque électrode avant son implantation dans le réacteur. Cette mesure permet également de diagnostiquer un vice de fabrication (fuite du revêtement, mauvaise exposition au fluide). La mesure du diamètre de chaque électrode a ensuite été effectuée dans les conditions réelles de manipulation afin de disposer d'un étalonnage fiable.

La mesure de la surface de l'électrode ne pouvant être faite par mesure de gradient pariétal de vitesse connu, comme l'avait réalisée Naderifar (1995), nous avons utilisé la mesure de la réponse transitoire en courant à un échelon de tension (voir Seguin (1997)). C'est l'objet des paragraphes suivants.

Asymptote de Cottrell

On considère la réponse en courant d'une électrode plane dont le potentiel est brusquement amené de 0 au potentiel de polarisation. Dans le cas d'une solution électrolytique sans convection, le profil temporel de courant est donné par l'équation (1.25), dite *équation de Cottrell* (voir Bard et Faulkner (1980, pp. 142-144))

$$i(t) = \nu_e c_0 \mathcal{F} A_e \left(\frac{\mathcal{D}}{\pi t} \right)^{1/2} \quad (1.25)$$

On peut donc déterminer la surface A_e de l'électrode en calculant la pente a de la droite $i(t)$ vs $t^{-1/2}$ par $A_e = \frac{a\sqrt{\pi}}{\nu_e c_0 F \sqrt{D}}$.

On notera qu'un tel étalonnage donne immédiatement le produit $A_e \cdot c_0$, rendant inutile la détermination de la concentration puisque c'est ce produit qui intervient dans l'équation (1.6). Cependant, la connaissance de c_0 est un moyen de vérifier que la taille de l'électrode a une valeur satisfaisante et de contrôler le vieillissement de la solution. De plus, cette donnée est nécessaire pour le calcul du gradient de vitesse sur l'électrode.

Résultat des étalonnages

On présente sur la figure (1.13) une courbe de réponse en intensité à un échelon de polarisation. On constate que cette courbe présente une partie linéaire, qui correspond à l'asymptote de Cottrell.

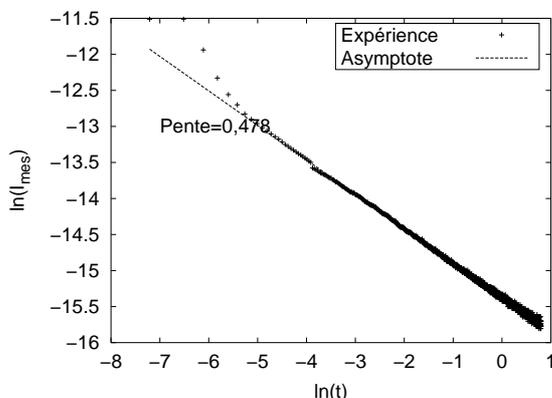


FIG. 1.13 – Réponse à un échelon de polarisation

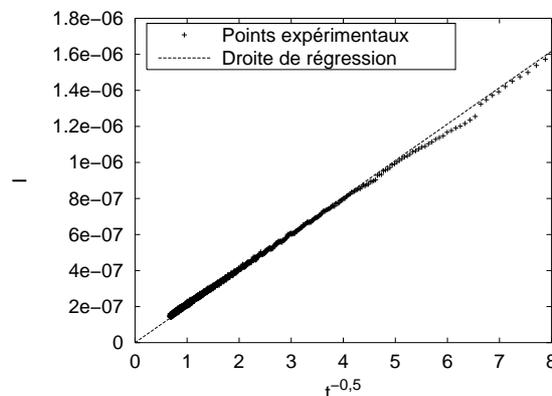


FIG. 1.14 – Détermination de l'aire de la sonde

Le tracé de la droite $i(t)$ vs $t^{-1/2}$ est présenté sur la figure (1.14). Cette droite est bien définie, et permet donc d'estimer correctement les surfaces des électrodes. Les pentes obtenues sont à chaque fois comprises entre 0,45 et 0,54. Il est à noter que la sonde 3 présente des pentes d'asymptotes de Cottrell très différentes de 0,5 (entre 0,6 et 0,8), qu'un nettoyage ne semble pas pouvoir modifier. On restera donc très critique vis-à-vis des résultats de cette sonde.

Le tableau (1.1) présente le résultat des étalonnages des sondes électrochimiques. Seuls les résultats obtenus pour les sondes en situation sont présentés (les indices de d_e correspondent à des mesures effectuées à des dates différentes).

Les valeurs obtenues pour d_e sont assez éloignées du nominal (soit 250 μm). Cette différence est de l'ordre de celle observée par Latifi (1988) ou Naderifar (1995) sur leurs propres montages, et provient probablement en grande partie du polissage de la surface de l'électrode. On peut cependant incriminer la précision de la mesure de c_0 , qui induit une erreur d'environ 5 % sur d_e .

TAB. 1.1 – Etalonnage des sondes électrochimiques

Sonde n°	d_e							Ecart maximum (%)
	1	2	3	4	5	6	7	
1	469	482	564	517	473	505	486	13 %
2	328	345	382	356	339	352	328	10 %
3	312	330	362	332	317	312	316	11 %
4	437	433	498	465	436	439	430	11 %

1.3.7 Mise en œuvre

Nous avons déterminé la tension de polarisation du système (différence de tension entre la cathode et la microélectrode) par tracé des courbes intensité/potential pour différentes vitesses d'écoulement. Ces courbes sont présentées sur la figure (1.15).

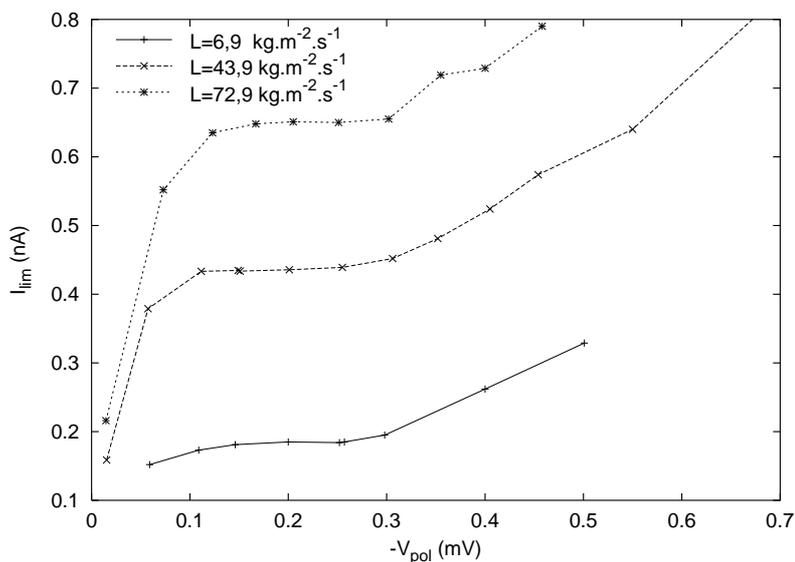


FIG. 1.15 – Courbes intensité-potential pour différents débits de liquide

Au vu de ces résultats, on a décidé de se placer à une polarisation $V_{pol} = -200 \text{ mV}$.

Cette valeur avait également été déterminée par voltamétrie cyclique (mesure du courant limite lors d'un cycle de tension de polarisation) ; lors de ces essais (hors colonne), il avait été constaté que la présence d'oxygène dissout entraînait une modification de la mesure. C'est pourquoi toutes les expériences concernant ces sondes ont été menées dans des liquides préalablement dégazés, et le cas échéant en utilisant l'azote comme gaz.

Afin de s'assurer que la surface des électrodes reste propre, il est procédé à un nettoyage électrochimique ; on polarise l'électrode successivement à $+0,5 \text{ V}$ et $-1,3 \text{ V}$, afin de dégager respectivement de l'oxygène et de l'hydrogène, et ce pendant 1 à 2 minutes. Ce type de nettoyage risque de faire varier la concentration en $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$, mais on peut vérifier que cet effet est négligeable.

1.4 Caractéristiques physicochimiques des fluides utilisés

Lors des mesures électrochimiques, le liquide utilisé est une solution aqueuse d'hydroxyde de sodium à 0,5 M, contenant 10^{-2} M de $\text{K}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ et entre 10^{-3} et $5 \cdot 10^{-3}$ M de $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6$. Le rapport des concentrations entre hexacyanoferrate de potassium II et III est choisi volontairement élevé afin d'éviter la limitation diffusionnelle au niveau de la contre-électrode. La mesure de la concentration en $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$ est effectuée par spectrophotométrie d'absorption, à la longueur d'onde λ de 420 nm. L'étalonnage du spectrophotomètre a été réalisé par utilisation de solutions étalons d'hexacyanoferrate de potassium II et III titrées par le sulfate de cobalt (voir annexe C). Au cours de ces mesures, nous avons choisi de travailler avec de l'azote (voir (1.3)).

Pour les mesures locales de pression, le liquide utilisé est de l'eau de ville et le gaz est de l'air (fourni par le réseau d'air comprimé).

Les gaz utilisés (air et azote) étant supposés parfaits, leurs masses volumiques peuvent être déduites de la relation des gaz parfaits. La viscosité de la phase gazeuse varie très peu (0,15%) sur l'intervalle de pression utilisé, et seul sa variation en fonction de T a été prise en compte.

Nous avons utilisé les mesures du coefficient de diffusion \mathcal{D} effectuées par Naderifar (1995). Ainsi, pour une solution de NaOH à 0,5 M et à une température de 30°C , $\mathcal{D}_L = 7,24 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

TAB. 1.2 – Caractéristiques des fluides utilisés

Fluide	T	ρ ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	μ (Pa·s)
Air	25°C	$f(P)$	$1,845 \cdot 10^{-5}$
Azote	30°C	$f(P)$	$1,764 \cdot 10^{-5}$
Eau	25°C	997	$8,9 \cdot 10^{-4}$
Solution NaOH (0,5 M)	30°C	1019	$9,0 \cdot 10^{-4}$

Il est à noter que la solution d'hexacyanoferrate de potassium II et III se dégrade à la lumière. Cependant, en évitant au maximum l'exposition (par exemple, en conservant la solution dans le bac de stockage, opaque, et non dans la colonne transparente), il a été possible de la conserver durant environ deux semaines sans dégradation importante (pas de baisse marquée de la concentration en $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$).

1.5 Analyse du signal

Nous présenterons ici les différentes techniques utilisées pour traiter les signaux captés par les microélectrodes ou par les capteurs de pression en paroi. Certaines de ces méthodes ont déjà été utilisées par Horowitz et coll. (1997) pour caractériser les transitions de régime dans un RCLFA. Nous verrons cependant (dans ce chapitre, ainsi qu'aux chapitres 4 et 5) que les grandeurs calculées par ces différentes méthodes peuvent être porteuses d'un nombre important d'informations intéressantes.

1.5.1 Grandeurs statistiques

Pour chaque signal x , les moments d'ordre 1 à 4 (M_1 à M_4) ont été calculés (on rappelle que $M_n (n \geq 2) = \int_{-\infty}^{+\infty} (x - \bar{x})^n p(x) dx$ et $M_1 = \int_{-\infty}^{+\infty} xp(x) dx$, p étant la densité de probabilité de la variable x); on en déduit les grandeurs statistiques significatives, soit :

- $\bar{x} = M_1$, moyenne du signal ;
- $\sigma_x = \sqrt{M_2}$, écart-type du signal, caractéristique de l'intensité des fluctuations ;
- $\Theta_x = \sigma_x/\bar{x}$, taux de fluctuation ;
- $\mathcal{D} = M_3/M_2^{3/2}$, facteur de dissymétrie de la distribution ;
- $\mathcal{F} = M_4/M_2^2$, facteur d'aplatissement de la distribution.

\mathcal{F} et \mathcal{D} caractérisent principalement l'écart à une distribution gaussienne (pour laquelle $\mathcal{D} = 0$ et $\mathcal{F} = 3$).

1.5.2 Analyse en fréquence

Détermination de la densité spectrale de puissance

Le calcul de la densité spectrale de puissance \mathcal{S}_{xx} d'un signal x permet notamment de déterminer sa ou ses fréquences dominantes. En fait, elle donne accès à la puissance du signal correspondant à une fréquence donnée. On la définit en théorie comme le produit conjugué des transformées de Fourier du signal :

$$\mathcal{S}_{xx}(f) = X(f) \cdot X^*(f) \quad (1.26)$$

avec $X(f) = TF[x(t)]$.

Elle est déterminée en pratique par (1.27).

$$\mathcal{S}_{xx}(f) = TF(C_{xx}(\tau)) \quad (1.27)$$

où C_{xx} est la fonction d'autocorrélation du signal.

Le signal est échantillonné à une fréquence f_e connue pendant une durée T , soit sur $n = f_e T$ points. Le calcul de \mathcal{S}_{xx} n'est en général pas effectué directement par transformation de Fourier du signal, car il est difficile d'effectuer ces calculs sur des signaux comportant un grand nombre de points.

Il est donc nécessaire d'utiliser d'autres méthodes pour déterminer \mathcal{S} : la méthode du corrélogramme ou celle du périodogramme. Nous avons choisi d'utiliser celle dite du *périodogramme*² ; elle consiste à calculer le spectre par le module carré de la transformée de Fourier, non sur le signal complet mais sur un intervalle de n_e points. Les spectres élémentaires ainsi obtenus sont ensuite moyennés pour donner \mathcal{S} .

Le fait de ne considérer qu'un intervalle à la fois induit un filtrage du signal (par une fonction fenêtre valant 1 sur l'intervalle de calcul et 0 ailleurs), qui induit une déformation des spectres. Afin d'y remédier, on applique un fenêtrage supplémentaire sur l'intervalle de calcul, qui filtrera le signal à la place de la fonction fenêtre. Ce fenêtrage supplémentaire est appelé *apodisation*, et est choisi de façon à déformer le moins possible le signal. La

²C'est la méthode implémentée par défaut dans le logiciel MATLAB

déformation est d'autant plus faible que n_e est important, mais la variance de \mathcal{S} est directement proportionnelle à n_e ($\sigma_{\mathcal{S}} = n_e/n$, où n est donc le nombre total de points d'échantillonnage du signal) : il s'agit donc d'un compromis entre filtrage et exactitude du résultat. Le fenêtrage utilisé pour tous nos traitements est basé sur la fenêtre de Hanning, définie par $f_d(t) = 0,815 [1 + \cos \frac{2\pi t}{\theta}]$ pour $|t| < \theta/2$ et $f_d(t) = 0$ ailleurs.

Techniquement, afin de limiter les effets de bord, on calculera les transformées de Fourier sur des intervalles non disjoints, c'est à dire que chaque intervalle possède une partie commune avec l'intervalle suivant et le précédent. On parle alors de recouvrement (overlap).

En ce qui concerne le choix de la fréquence d'échantillonnage f_e , on sait que l'analyse des signaux, selon le théorème de Shannon, ne peut donner accès qu'à des fréquences inférieures à $f_e/2$ (Max, 1985). Le théorème de Shannon n'est de plus qu'un cas limite, la fréquence d'échantillonnage devant par exemple être augmentée lorsqu'on traite des signaux brefs. Cependant, afin de conserver une précision honorable sur la densité spectrale de puissance, la fréquence f_e ne doit pas être trop élevée. En effet, pour un spectre élémentaire de n_e points, la résolution spectrale est donnée par $\delta f = \frac{f_e}{n_e}$.

Autocorrélations

La fonction d'autocorrélation est définie pour un signal x quelconque par :

$$C_{xx}(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x(t)x^*(t - \tau) dt = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x(t)x^*(t - \tau) dt \quad (1.28)$$

Plusieurs paramètres intéressants peuvent en être déduits – figure (1.16). On peut tout d'abord définir un temps τ_c dit temps de cohérence, qui correspond à la première annulation de la fonction d'autocorrélation :

$$\tau_c = \min E_{\tau} \text{ avec } E_{\tau} = \{\tau > 0; C_{xx}(\tau) = 0\} \quad (1.29)$$

Il est possible ensuite de définir un temps intégral de cohérence T_c par :

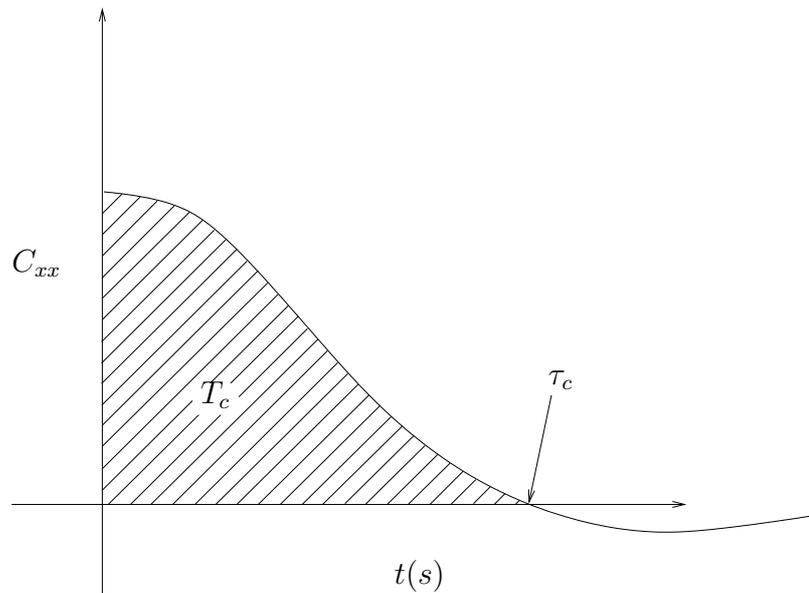
$$T_c = \int_0^{\tau_c} C_{xx}(\tau) d\tau \quad (1.30)$$

Ces trois temps sont caractéristiques des diverses échelles des phénomènes mesurés par le signal. Leur signification physique sera discutée au chapitre 4.

Intercorrélation

Lorsqu'on dispose de deux grandeurs fonctions du temps, on peut étudier la relation (éventuelle) entre ces deux grandeurs. Pour cela, on a choisi de calculer la *fonction d'intercorrélation* $C_{xy}(t_0, \tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} x(t)y(t - \tau) dt$, fonction qui, dans le cas de processus stationnaires, s'écrira :

$$C_{xy}(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x(t)y(t - \tau) dt \quad (1.31)$$

FIG. 1.16 – Temps caractéristiques de C_{xx}

Cette fonction est calculée par transformée de Fourier inverse de la densité spectrale de puissance croisée des deux signaux, et normée par le produit des écarts types des signaux soit :

$$C_{xy} = \frac{\sqrt{(TF^{-1}(\mathcal{S}_{xy})) (TF^{-1}(\mathcal{S}_{xy}))^*}}{\sqrt{\tilde{x}^2} \sqrt{\tilde{y}^2}} \quad (1.32)$$

La fonction d'intercorrélation porte deux informations importantes :

- elle quantifie la quantité d'énergie échangée par deux signaux ;
- elle permet de calculer un éventuel décalage temporel (correspondant au maximum de C_{xy}).

Notons que le fait que deux signaux n'aient pas d'énergie d'interaction (et donc, que leur fonction d'intercorrélation soit nulle) ne signifie pas que les processus associés soient indépendants (Max, 1985, p. 113). La réciproque est par contre vraie.

1.5.3 Analyse temps-fréquence

L'analyse de Fourier ne permet d'étudier que les signaux stationnaires (dont la ou les périodes sont constantes dans le temps). Il est cependant possible de travailler sur des signaux dont la fréquence varie avec le temps. Malheureusement, les algorithmes dont nous disposons ne permettent de travailler que sur un faible nombre de points. Maucci (1999) a cependant analysé ce type de signaux à l'aide de méthodes fractales (analyse de Hurst modifiée) qui permettent de rendre compte de leur comportement.

1.5.4 Méthode VITA et traitement associé

Acronyme pour Variable Interval Time Averaging (Moyenne sur des intervalles de temps variables), cette méthode a été proposée par Blackwelder et Kaplan (1976), et est utilisée dans le cas des écoulements turbulents pour détecter les explosions de couche limite, les renouvellements de surface, et plus généralement tout « évènement » correspondant à un phénomène physique d'importance suffisante.

Principe de la méthode

Le principe de la méthode est le suivant : on définit

$$\hat{x}(t, a) = \frac{1}{a} \int_{t-a/2}^{t+a/2} x(\tau) d\tau \quad (1.33)$$

qui est une moyenne locale de x sur l'intervalle de temps de taille a centré sur t .

La variance locale peut donc s'exprimer par :

$$\sigma_x^2(t, a) = \widehat{x^2}(t, a) - \widehat{x}^2(t, a) \quad (1.34)$$

On notera que cette quantité est toujours positive.

Les paramètres statistiques du signal (\bar{x} et σ_x^2) sont donc les limites de ces quantités locales, soit :

$$\bar{x} = \lim_{a \rightarrow \infty} \widehat{x} \quad \text{et} \quad \sigma_x^2 = \lim_{a \rightarrow \infty} \sigma_x^2(t, a) \quad (1.35)$$

On compare enfin la variance locale du signal à sa valeur globale par la fonction de détection D définie par :

$$D(t) = \begin{cases} 1 & \text{si } \sigma_x(t, a) > k\sigma_x^2 \\ 0 & \text{autrement} \end{cases} \quad (1.36)$$

Ce calcul suppose un choix préliminaire des valeurs du seuil k et de la largeur a . Ce choix n'est pas effectué par les auteurs. Par contre, Johansson et Alfredsson (1982) dissertent sur le choix de ces valeurs ; ils distinguent par ailleurs deux types d'évènements, ceux à pente positive et ceux à pente négative, correspondant respectivement à des accélérations et des retards pour une mesure de vitesse. En conduite vide, pour un écoulement turbulent, ils constatent une prédominance des évènements à pente positive pour des valeurs de k importantes.

Ces deux grandeurs une fois fixées (se reporter à la page 101 pour le choix de ces paramètres), il est possible, partant des valeurs de $D(t)$, de calculer une distribution correspondant au temps entre deux « évènements », soit entre deux séries de 1.

C'est cette distribution de temps que nous nous proposons d'interpréter en utilisant un modèle de type renouvellement de surface, présenté ci-après.

Modèle de renouvellement de surface

Le modèle de renouvellement d'interface a été proposé initialement par Danckwerts (1951) et appliqué au transfert de matière à l'interface gaz-liquide. Dans notre cas, il consiste à considérer un élément de fluide provenant du centre de l'écoulement turbulent, qui vient remplacer un autre élément de fluide à l'interface liquide/solide. Là, l'élément de fluide transfère la grandeur extensive dont il est porteur (matière, chaleur, quantité de mouvement) pendant un temps θ appelé âge de l'élément. La probabilité qu'a l'élément de fluide de quitter l'interface est considérée comme indépendante de l'âge de l'élément (sur un intervalle de temps très court), ce qui fournit une distribution d'âge de la forme :

$$\phi(\theta) = \frac{e^{-\frac{\theta}{t_0}}}{t_0} \quad (1.37)$$

L'âge moyen de ces éléments vaut alors $t_0 = \bar{\theta} = \int_0^\infty \theta \phi(\theta) d\theta$.

Notons que les calculs sont également possibles en considérant une distribution d'âge qui ne soit pas exponentielle. Ce type de distribution est cependant observée expérimentalement, comme on le verra au §4.3.7, et nous l'utiliserons donc pour le développement des calculs.

Si on considère une quantité physique $F(y, t)$ (pouvant être T, c, u), on peut calculer sa moyenne temporelle locale par :

$$\bar{F}(y) = \int_0^\infty F(y, t) \phi(t) dt \quad (1.38)$$

et en considérant la distribution présentée en (1.37), on a :

$$\bar{F}(y) = \frac{1}{t_0} \int_0^\infty F(y, t) e^{-t/t_0} dt \quad (1.39)$$

On remarquera que cette moyenne temporelle locale est la transformée de Laplace de la grandeur instantanée, divisée par t_0 :

$$\bar{F}(y) = \frac{1}{t_0} \mathcal{L}(F) \quad (1.40)$$

La moyenne temporelle locale du flux Φ de F vaut $\bar{\Phi} = \beta \left. \frac{\partial \bar{F}}{\partial y} \right|_{y=0}$ (où β est le coefficient de transfert - λ, \mathcal{D} ou ν) soit :

$$\bar{\Phi} = \beta \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{1}{t_0} \int_0^\infty F(y, t) e^{-t/t_0} dt \right) \quad (1.41)$$

Dans le cas du transfert de quantité de mouvement, sous réserve d'avoir un écoulement turbulent loin de l'interface, on a, dans la couche limite laminaire :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\mu}{\rho} \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \quad (1.42)$$

avec :

$$t = 0, \quad y \geq 0, \quad u = u_b \quad (1.43a)$$

$$t > 0, \quad y = 0, \quad u = 0 \quad (1.43b)$$

$$t > 0, \quad y \rightarrow \infty, \quad u = u_b \quad (1.43c)$$

L'équation (1.42) a pour solution :

$$u(y, t) = u_b \operatorname{erf} \left(\frac{y}{2\sqrt{\nu t}} \right) \quad (1.44)$$

Si l'on applique (1.41) au transfert de quantité de mouvement, on obtient, pour la contrainte pariétale :

$$\overline{\tau}_p = \frac{\mu_f u_b}{\sqrt{\nu t_0}} \quad (1.45)$$

où u_b est la vitesse au cœur de l'écoulement turbulent (« loin » de la paroi).

En termes de gradient de vitesse, (1.45) se réécrit :

$$\overline{S} = \frac{u_b}{\sqrt{\nu t_0}} \quad (1.46)$$

La détermination du temps caractéristique de renouvellement peut être faite à l'aide de la méthode VITA, si l'on considère qu'un évènement détecté correspond à un renouvellement de surface.

Remarquons que le temps t_0 et le gradient \overline{S} sont obtenus simultanément sur la même électrode.

Première partie
Eléments de modélisation

Chapitre 2

Modélisation en écoulement monophasique

Celui qui ne progresse pas chaque jour, recule
chaque jour

CONFUCIUS

2.1 Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les différents modèles que nous avons utilisés pour simuler l'hydrodynamique et le transfert de matière dans le milieu poreux en écoulement monophasique de liquide ; les méthodes de résolution sont également décrites, et les résultats sont comparés à diverses mesures expérimentales.

2.2 Modélisation et simulation numérique de l'écoulement

La modélisation des transferts de quantité de mouvement d'un liquide incompressible dans un milieu poreux est une tâche qui peut être effectuée à différentes échelles selon le phénomène d'intérêt.

Parmi les nombreuses échelles spatiales qui peuvent exister dans le milieu poreux, on peut citer :

1. l'échelle des hétérogénéités macroscopiques
2. l'échelle homogène
3. l'échelle du pore, ou microscopique
4. l'échelle des hétérogénéités microscopiques

Bien que la modélisation et la simulation à l'échelle du pore soit très prometteuse pour la compréhension des phénomènes mis en jeu (Logtenberg et coll., 1999), les calculs nécessaires sont à l'heure actuelle impossible à effectuer sur un système à l'échelle industrielle

(notons qu'un mètre cube de garnissage contient de l'ordre de 9.10^7 particules de 5 mm de diamètre, alors que les calculs à l'échelle microscopique portent sur quelques dizaines de particules au plus).

Dans cette étude, nous avons donc choisi de nous placer à l'échelle homogène, c'est à dire de considérer le milieu poreux comme un continuum uniforme à l'échelle macroscopique. On exprimera alors des grandeurs comme la vitesse superficielle ou la porosité par des fonctions continues et relativement régulières, alors que ces grandeurs sont très variables, voire discrètes à l'échelle du pore.

2.2.1 Etablissement des équations du modèle

Equations de conservation microscopiques

A l'échelle microscopique, l'équation de conservation de la quantité de mouvement s'écrit :

$$\rho_f \frac{\partial \mathbf{u}_i}{\partial t} + \rho_f \nabla \cdot (\mathbf{u}_i \otimes \mathbf{u}_i) = -\nabla P_f + \mu_f \nabla^2 \mathbf{u}_i \quad (2.1)$$

L'équation de conservation de la masse pour un fluide incompressible s'écrit comme suit :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.2)$$

Ces équations n'étant valables qu'au niveau *local*, il faut les moyenner sur un volume élémentaire représentatif (V.E.R.) pour obtenir les grandeurs physiques macroscopiques accessibles.

Prise de moyenne des équations de conservation

Ces calculs ont été effectués par Gray et O'Neill (1976). D'une façon générale, considérons une quantité W d'une phase a , que l'on souhaite moyenner sur un volume \mathcal{V} . Le volume occupé par la phase a est noté \mathcal{V}_a .

On peut définir la valeur moyenne de W dans la phase a par :

$$\langle W_a \rangle = \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\mathcal{V}} W_a d\mathcal{V} \quad (2.3)$$

Si on calcule la moyenne dite intrinsèque de W , c'est à dire sa moyenne sur la phase a uniquement, et si W_a est nul hors la phase a , on a :

$$\langle W_a \rangle^a = \frac{1}{\mathcal{V}_a} \int_{\mathcal{V}_a} W_a d\mathcal{V} = \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\mathcal{V}} W_a d\mathcal{V} \quad (2.4)$$

On peut ensuite moyenner les équations de transport par le biais des deux expressions :

$$\frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\mathcal{V}_a} \nabla W_a d\mathcal{V} = \nabla \langle W_a \rangle + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\mathcal{A}_{ab}} W_a \mathbf{n} d\mathcal{A} \quad (2.5)$$

$$\frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\mathcal{V}_a} \nabla \cdot \mathbf{W}_a d\mathcal{V} = \nabla \cdot \langle \mathbf{W}_a \rangle + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\mathcal{A}_{ab}} \mathbf{W}_a \cdot \mathbf{n} d\mathcal{A} \quad (2.6)$$

où \mathbf{n} est le vecteur unité normal à la surface \mathcal{A}_{ab} correspondant à l'interface des phases a et b . On notera $\varepsilon_a = \frac{V_a}{V}$ la fraction de volume occupée par la phase a . Dans le cas de l'écoulement d'un fluide unique F , ε_F est le taux de vide du milieu poreux ε .

Le problème principal de cette approche est la fermeture des équations, les intégrales de surface apparaissant dans les expressions (2.5) et (2.6) étant à l'origine de termes supplémentaires et *a priori* inconnus.

Equations macroscopiques

Hsu et Cheng (1990) ont décomposé la vitesse moyennée sur le volume total u en ses composantes moyennes et fluctuantes \bar{u} et \tilde{u} . Ils écrivent alors le tenseur de vitesse moyen comme $\overline{u \otimes u} = \bar{u} \otimes \bar{u} + \overline{\tilde{u} \otimes \tilde{u}}$ et proposent de négliger le terme $\overline{\tilde{u} \otimes \tilde{u}}$ (correspondant à la dispersion hydrodynamique).

Ils ont ensuite calculé l'expression des forces de traînée sur un lit de sphère et aboutissent à la relation :

$$\mathbf{F}_f = - [c_0 + c'_0 Re_i + c''_0 Re_i] \mu_f |u_{i,f}| \frac{\mathbf{u}_{i,f}}{|u_{i,f}|} \quad (2.7)$$

où \mathbf{F}_f représente la force exercée par le solide sur le fluide par unité de volume.

Ils ont choisi enfin les coefficients $c_0 = \frac{A(1-\varepsilon)}{18\varepsilon}$, $c'_0 = 0$ et $c''_0 = B/18$, ramenant \mathbf{F}_f à une expression du type de celle d'Ergun.

L'équation moyennée s'écrit alors en termes de vitesse superficielle :

$$\underbrace{\rho_f \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t}}_{(a)} + \underbrace{\rho_f \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{u} \otimes \mathbf{u}}{\varepsilon} \right)}_{(b)} = \underbrace{-\nabla P}_{(c)} + \underbrace{\mu_f \nabla^2 \mathbf{u}}_{(d)} - \underbrace{\phi \mathbf{u}}_{(e)} \quad (2.8)$$

avec :

$$\phi = -\frac{\mathbf{F}_f}{\mathbf{u}} = A \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} \mu_f + B \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3 d_p} \rho_f |u| \quad (2.9)$$

et $P = \varepsilon P_f$, P_f étant la pression réelle (intrinsèque) du fluide.

On notera que d'autres auteurs (Vafai et Tien, 1981) proposent comme équation moyenne :

$$\frac{\rho_f}{\varepsilon} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \frac{\rho_f}{\varepsilon^2} \nabla \cdot (\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}) = -\nabla P_f + \frac{\mu_f}{\varepsilon} \nabla^2 \mathbf{u} - \frac{\phi}{\varepsilon} \mathbf{u} \quad (2.10)$$

Ces deux formulations sont identiques dans le cas où la porosité est uniforme.

L'équation (2.8) se compose de plusieurs termes ayant des significations physiques distinctes ; on peut retrouver des termes analogues dans les équations de Navier-Stokes, mais nous verrons que ces analogies doivent être manipulées avec précaution, en particulier quant à la signification des termes de pression.

Le terme (a) correspond à l'évolution dans le temps de l'hydrodynamique ; une de nos hypothèses de travail étant la stationnarité de l'écoulement, nous le considérerons nul. Cependant, nous verrons plus loin qu'il peut être intéressant de considérer ce terme comme non nul pour la résolution numérique. Le terme (b) représente le transport advectif de la quantité de mouvement. Certains auteurs considèrent ce terme comme négligeable et n'en tiennent pas compte lors de la résolution numérique de (2.8). Ce terme dépend

également de la topologie du milieu poreux, via ε . Le terme (c) correspond à la perte de pression motrice due à l'écoulement ; il faut cependant différencier la pression réelle P_f (mesurée) de la pression de calcul P (pression moyennée sur le V.E.R.) considérée ici, ces deux pressions étant liées par la relation $P = \varepsilon P_f$. Le terme (d) permet de prendre en compte le transfert visqueux de quantité de mouvement. Quant au terme (e), il représente l'influence de la présence du milieu poreux sur l'écoulement. Il peut se décomposer en deux parties, correspondant à la loi de Darcy (linéaire en u) et à la contribution quadratique de Forchheimer.

De même, l'équation de continuité moyennée (2.2) s'écrit simplement :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2.11)$$

La résolution couplée de ces deux équations (2.8) et (2.11) permet de calculer les champs de vitesse et de pression dans le réacteur.

Afin de résoudre ce système, nous utiliserons dans tout ce qui suit les conditions aux limites suivantes :

$$\left. \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 \quad (2.12)$$

$$\mathbf{u}(r = R_c) = 0 \quad (2.13)$$

La condition (2.12) traduit la symétrie axiale du système alors que la relation (2.13) représente la condition de non glissement à la paroi ($u_z = 0$) et traduit l'imperméabilité de la paroi ($u_r = 0$).

2.2.2 Modélisation de la variation de porosité

La présence d'une paroi tend à ordonner les éléments du garnissage, et donc à contrôler sa distribution. Cet effet, appelé *effet de paroi* se manifeste particulièrement lorsque le rapport D_c/d_p est faible.

Le système expérimental utilisé dans ce travail présente un effet de paroi marqué ($\frac{D_c}{d_p} = 11,3$), nous avons donc décidé de tenir compte de cet effet par le biais d'une variation de la porosité ε du milieu poreux suivant la position radiale. La variation axiale de la porosité a été négligée, mais peut également être prise en considération, en particulier pour des réacteurs présentant un ratio L_c/d_p faible.

Benenati et Brosilow (1962) et Ridgway et Tarbuck (1968) se sont les premiers intéressés à l'étude expérimentale de l'effet de paroi. Différents auteurs ont alors déterminé des relations entre la position radiale et la porosité.

Cohen et Metzner (1981) ont proposé un modèle à trois zones qui semble représenter de façon réaliste les variations de la porosité :

$$x \leq 0,25 \Rightarrow \frac{1 - \varepsilon}{1 - \varepsilon_\infty} = 4,5 \left(x - \frac{7}{9}x^2\right) \quad (2.14a)$$

$$0,25 \leq x \leq 8 \Rightarrow \frac{\varepsilon - \varepsilon_\infty}{1 - \varepsilon_\infty} = a_1 \cdot \exp(-a_2x) \cos[(a_3x - a_4)\pi] \quad (2.14b)$$

$$x > 8 \Rightarrow \varepsilon = \varepsilon_0 \quad (2.14c)$$

où $x = \frac{(R_c - r)}{d_p}$, $a_1 = 0,3463$, $a_2 = 0,4273$, $a_3 = 2,4509$, $a_4 = 2,2011$.

Un modèle nettement plus simple a été présenté par Vortmeyer et Schuster (1983).

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + (1 - \varepsilon_0) \exp\left(-2\frac{(R_c - r)}{d_p}\right) \quad (2.15)$$

Govindarao et Froment (1986) ont divisé le réacteur en couches cylindriques concentriques et ont calculé la porosité dans chaque couche. Leur modèle n'a pas été retenu car difficile à exprimer sous la forme d'une fonction du rayon.

Plus récemment, Kufner et Hofmann (1990) ont proposé de représenter la variation de porosité sous forme d'oscillations amorties :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \left[1 + C \exp\left(1 - \frac{R_c - r}{d_p}\right) \cos\left(2\pi \frac{R_c - r}{d_p}\right) \right] \quad (2.16)$$

Cependant, les valeurs obtenues par cette relation pour notre géométrie ne paraissent pas réalistes (nous obtenons par exemple une porosité minimale de 4.10^{-3}) aussi ne l'utiliserons-nous pas.

Le même type de relation a été proposé par Mueller (1991, 1992) soit :

$$\varepsilon = \varepsilon_b + (1 - \varepsilon_b) J_0\left(a \frac{r}{d_p}\right) \exp\left(-b \frac{r}{d_p}\right) \quad (2.17)$$

avec $b = 0,315 - \frac{0,725}{D_c/d_p}$, $\varepsilon_b = 0,365 + \frac{0,220}{D_c/d_p}$ et

$$a = 7,45 - \frac{3,15}{D_c/d_p} \quad \text{pour } 2,02 \leq D_c/d_p \leq 13,0 \quad (2.18a)$$

$$a = 7,45 - \frac{11,25}{D_c/d_p} \quad \text{pour } 13,0 \leq D_c/d_p \quad (2.18b)$$

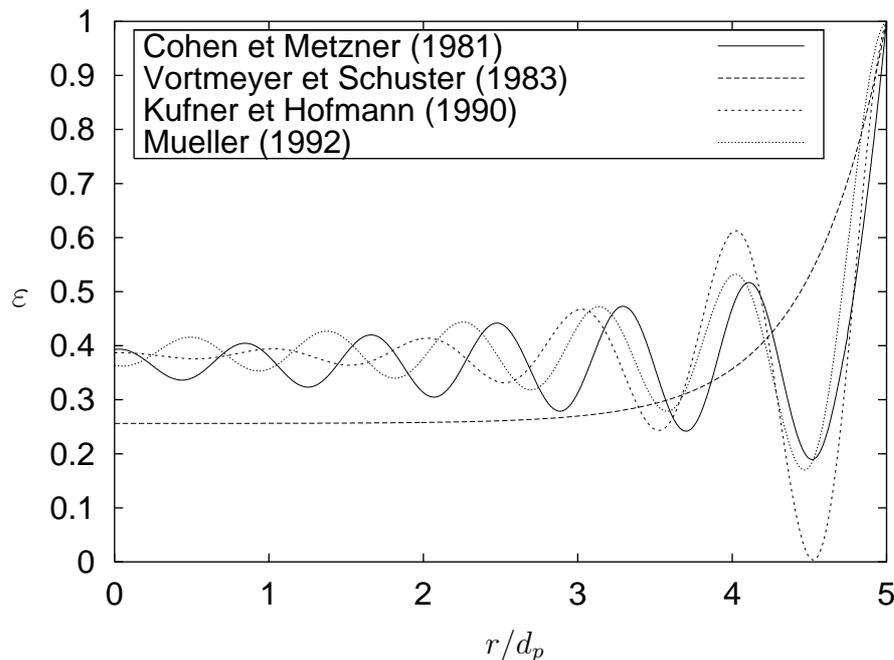
Certains de ces modèles nécessitent l'ajustement de paramètres tels que la porosité dans la zone centrale (supposée constante) et la porosité à la paroi. Nous avons choisi de les fixer de façon à avoir une porosité moyenne $\bar{\varepsilon}$ égale à la porosité mesurée et une porosité de 1 à la paroi, soit :

$$\varepsilon(r = R_c) = 1 \quad (2.19a)$$

$$2 \int_0^{R_c} \varepsilon(r) r dr = \bar{\varepsilon} R_c^2 \quad (2.19b)$$

Dans cette étude, ce sont les profils de Cohen et Metzner (1981) et de Vortmeyer et Schuster (1983) qui ont été utilisés. Le premier a été retenu pour son réalisme et la possibilité de faire varier la porosité moyenne $\bar{\varepsilon}$, le second l'a été pour sa simplicité.

Les profils obtenus pour $\bar{\varepsilon} = 0,39$ sont présentés sur la figure (2.2.2). On notera que le profil de Mueller (1992) fait exception puisque le modèle fournit explicitement ε_0 ; il

FIG. 2.1 – Fonctions de porosité - $\bar{\varepsilon} = 0,39$ TAB. 2.1 – Porosités à l'infini et en $r = 0$ pour différents modèles

Modèle	ε_0	$\varepsilon(r = 0)$
Cohen et Metzner (1981)	0,37	0,381
Vortmeyer et Schuster (1983)	0,273	0,273
Kufner et Hofmann (1990)	0,384	0,383
Mueller (1992)	0,384	0,373

conduit à $\bar{\varepsilon} = 0,387$ pour notre système, ce qui est suffisamment proche de 0,39 pour être considéré comme correct.

La porosité au centre du réacteur a été calculée par ces diverses relations, et est présentée dans le tableau (2.1).

On peut constater que le modèle de Vortmeyer et Schuster (1983) diffère fortement de tous les autres ; la valeur qu'il donne pour la porosité au centre de la colonne correspond à un empilement régulier de sphères.

Tous ces modèles sont applicables dans le cas de particules monodisperses sphériques. S'ils sont adéquats pour modéliser la porosité de notre réacteur, ils ne peuvent pas être utilisés dans d'autres cas (garnissage de particules non sphériques ou polydisperse). Dans le cas de tels systèmes, la modélisation de l'écoulement passera par la détermination d'une « carte » des porosités, par exemple par tomographie (Toye et coll., 1996). De telles méthodes ne sauraient par contre être utilisées à l'échelle industrielle, où il pourrait pourtant être intéressant de connaître la répartition exacte de la phase solide.

2.2.3 Modèle monodimensionnel

Dans un premier temps, seule la variation radiale de la vitesse axiale sera considérée, les termes de transport advectif seront donc négligés. Cette simplification de l'équation (2.8) est équivalente à l'utilisation de la relation d'Ergun adjointe d'un terme de Brinkman. L'utilisation de telles hypothèses permet de ramener le système d'équations aux dérivées partielles (2.8) à une équation différentielle ordinaire, plus simple et plus rapide à résoudre. Les résultats de ce modèle pourront être utilisés pour vérifier les résultats de modèles plus complexes obtenus dans les mêmes conditions.

L'équation résultant de ces simplifications s'écrit :

$$\mu_L \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{du_z}{d\rho} \right) = A \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} \mu_L u_z + B \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3 d_p} \rho_L u_z^2 + \frac{dP}{dz} \quad (2.20)$$

Sous ces deux hypothèses, on est ramené à une seule équation adimensionnelle :

$$\frac{d^2 U_z}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{dU_z}{d\rho} = \sigma^2 (U_z + Re_\varepsilon U_z^2) + \alpha \quad (2.21)$$

où $\alpha = \frac{R_c^2 (\Delta P / L_c)}{\mu_L u_0}$, $U_z = \frac{u_z}{u_0}$, $\rho = \frac{r}{R_c}$, $\sigma = R_c \sqrt{\frac{A(1-\varepsilon)^2 \varepsilon}{\varepsilon^3 d_p^2}}$ et $Re_\varepsilon = \frac{B}{A} \frac{\rho_L u_0 d_p}{\mu_L (1-\varepsilon)}$.

L'équation (2.21) est assez raide (système « stiff ») ; les méthodes classiques d'intégration ne peuvent donc pas être utilisées. Nous avons donc utilisé une méthode numérique originale, peu usitée à notre connaissance en génie des procédés, la *méthode des éléments frontières* (Ramachandran, 1990, 1992).

Présentation de la méthode des éléments frontières

On s'intéresse à la résolution d'une équation différentielle sur l'intervalle $[0, 1]$, la méthode pouvant bien sûr s'appliquer à des intervalles quelconques. Les grandeurs recherchées sont la fonction $U(\rho)$ mais aussi sa dérivée $p = \frac{dU}{d\rho}$. L'intervalle $[0, 1]$ est divisé en N sous-intervalles $[a_i; b_i]$ dont la longueur peut ne pas être identique.

On considère l'équation générale :

$$\frac{1}{\rho^\kappa} \frac{d}{d\rho} \left(\rho^\kappa \frac{dU}{d\rho} \right) = f(\rho, U) \quad (2.22)$$

soumise aux conditions aux limites suivantes :

$$\alpha_1 U + \beta_1 p = \gamma_1 \quad (2.23a)$$

$$\alpha_2 U + \beta_2 p = \gamma_2 \quad (2.23b)$$

Cette équation correspond à une équation de continuité dans un système de coordonnées dépendant de κ :

- coordonnées cartésiennes : $\kappa = 0$;
- coordonnées cylindriques : $\kappa = 1$;
- coordonnées sphériques : $\kappa = 2$.

On multiplie (2.22) par une fonction $\rho^\kappa G(\rho)$ non nulle. Les termes obtenus sont ensuite intégrés par rapport à ρ entre a_i et b_i , notés par la suite a et b . En intégrant le terme de gauche de (2.22) deux fois par parties, il vient :

$$\left[\rho^\kappa G \frac{dU}{d\rho} \right]_a^b - \left[\left(\rho^\kappa \frac{dG}{d\rho} \right) U \right]_a^b + \int_a^b \rho^\kappa \left(\frac{d^2 G}{d\rho^2} - \frac{\kappa}{\rho} \frac{dG}{d\rho} \right) U d\rho = \int_a^b \rho^\kappa G f(\rho, U) d\rho \quad (2.24)$$

La fonction G est choisie de façon à avoir :

$$\int_a^b \rho^\kappa \left(\frac{d^2 G}{d\rho^2} - \frac{\kappa}{\rho} \frac{dG}{d\rho} \right) U d\rho = 0 \quad \forall [a, b] \quad (2.25)$$

La résolution de cette équation conduit à deux valeurs de G nécessaires pour déterminer les deux inconnues U et p en chaque point du maillage.

$$\kappa = 0 \quad G_1 = 1 \quad G_2 = \rho \quad (2.26)$$

$$\kappa = 1 \quad G_1 = 1 \quad G_2 = \ln \rho \quad (2.27)$$

$$\kappa = 2 \quad G_1 = 1 \quad G_2 = \frac{1}{\rho} \quad (2.28)$$

On remplace alors dans (2.24) G par ses deux valeurs. Il vient :

$$G_1(b)p_b - G_1(a)p_a + \left(G_1'(a) - \kappa \frac{G_1(a)}{a} \right) U_a - \left(G_1'(b) - \kappa \frac{G_1(b)}{b} \right) U_b - \int_a^b G_1(\rho) f(\rho, U) d\rho = 0 \quad (2.29a)$$

$$G_2(b)p_b - G_2(a)p_a + \left(G_2'(a) - \kappa \frac{G_2(a)}{a} \right) U_a - \left(G_2'(b) - \kappa \frac{G_2(b)}{b} \right) U_b - \int_a^b \rho \ln \rho f(\rho, U) d\rho = 0 \quad (2.29b)$$

On pose :

$$F_1 = -G_1(a)p_a + G_1(b)p_b + \left(G_1'(a) - \kappa \frac{G_1(a)}{a} \right) U_a - \left(G_1'(b) - \kappa \frac{G_1(b)}{b} \right) U_b - \int_a^b G_1(\rho) f(\rho, U) d\rho \quad (2.30)$$

$$F_2 = -G_2(a)p_a + G_2(b)p_b + \left(G_2'(a) - \kappa \frac{G_2(a)}{a} \right) U_a - \left(G_2'(b) - \kappa \frac{G_2(b)}{b} \right) U_b - \int_a^b G_2(\rho) f(\rho, U) d\rho \quad (2.31)$$

Les équations (2.29a) et (2.29b) forment un système algébrique, correspondant à :

$$\begin{cases} F_1 = 0 \\ F_2 = 0 \end{cases} \quad (2.32)$$

Le système (2.32) est ensuite résolu à l'aide de la méthode de Newton-Raphson. Afin de calculer l'intégrale $\int_a^b Gf(\rho, U, p) d\rho$ présente dans les fonctions F , la fonction U est interpolée entre a_i et b_i par :

$$U = \phi_1(b-a)p_a + \phi_2U_a + \phi_3(b-a)p_b + \phi_4U_b$$

où $\phi_1 = \eta - 2\eta^2 + \eta^3$, $\phi_2 = 1 - 3\eta^2 + 2\eta^3$, $\phi_3 = -\eta^2 + \eta^3$, $\phi_4 = 3\eta^2 - 2\eta^3$ et $\eta = \frac{\rho-a}{b-a}$. Le choix de l'interpolation cubique est évident dans la mesure où l'on dispose des valeurs de U et de sa dérivée p en a et b .

Il découle de cette mise en équations que la méthode des éléments frontières permet de calculer simultanément la vitesse et sa dérivée exacte aux points de maillage. Ceci évite d'avoir à calculer $\frac{\partial U}{\partial \rho}$ par des méthodes numériques (différences finies) qui peuvent induire des erreurs importantes. De plus, l'utilisation d'un maillage non régulier (et même fortement non uniforme) est tout à fait possible et simple à implémenter, contrairement par exemple à des méthodes de différences finies. Enfin, cette méthode est robuste.

Le lecteur intéressé par cette méthode, et par son application aux équations aux dérivées partielles, pourra se reporter à l'ouvrage de Paris et Cañas (1997)

Application à notre cas

La méthode est appliquée à l'équation de conservation de quantité de mouvement à une dimension en coordonnées polaires (2.21) :

$$\frac{d^2U}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{dU}{d\rho} - \sigma^2(U + Re_\varepsilon U^2) = \alpha \quad (2.33)$$

On a vu que la pression intervenant dans (2.8) était une pression moyenne sur un volume élémentaire soit $P = \varepsilon P_f$; il est alors possible de considérer α comme une fonction de la position radiale, en posant :

$$\alpha = \varepsilon(\rho) \frac{R_c^2 \Delta P_f / L_c}{\mu u_0} = \varepsilon(\rho) \alpha' \quad (2.34)$$

avec α' constant. On notera que cette expression peut également être déduite de l'équation proposée par Vafai et Tien (1981) – équation (2.10) – soumise aux mêmes hypothèses.

Par ailleurs, on peut considérer la valeur moyenne de la pression de calcul, et prendre $\alpha = \bar{\varepsilon} \alpha'$, α étant alors effectivement constant. On verra plus loin que ce choix est préférable.

Il existe une contrainte physique sur la solution de l'équation, à savoir que la valeur du débit calculé par intégration sur la surface passante de la vitesse superficielle doit être égale au débit d'alimentation du liquide entrant, soit :

$$\int_0^{R_c} 2\pi r u(r) dr = \pi R_c^2 u_0 \quad (2.35)$$

soit en variables adimensionnelles :

$$Q = 2 \int_0^1 \rho U d\rho = 1 \quad (2.36)$$

L'algorithme de résolution est donc le suivant :

1. initialisation de α' ;
2. résolution du système (2.32) par la méthode de Newton-Raphson ;
3. si $|Q - 1| < \delta_Q$, arrêt du calcul ;
4. modification de α' suivant le résultat de la résolution et retour en (2).

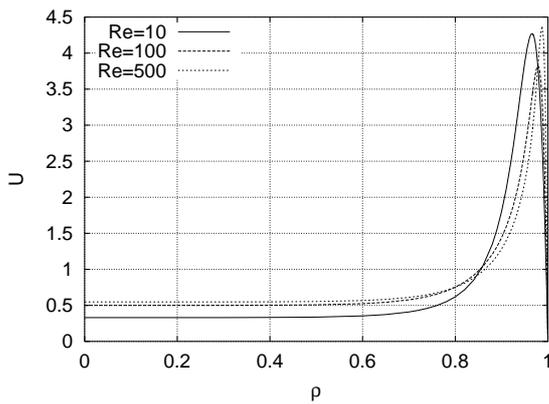
Le critère de convergence δ_Q a été pris égal à 10^{-4} pour tous les calculs présentés ici. On résout donc (2.33) en utilisant la valeur de α' qui vérifie (2.36) (ce qui revient à effectuer une optimisation de α' , (2.36) devenant le critère).

D'un point de vue pratique, on notera que l'utilisation d'un grand nombre de points de maillage, s'il peut éventuellement améliorer la lisibilité de la courbe, n'influe pas sur la qualité des résultats numériques. Par ailleurs, la disponibilité des dérivées en tous points du maillage permet l'interpolation cubique des résultats en vue d'un tracé.

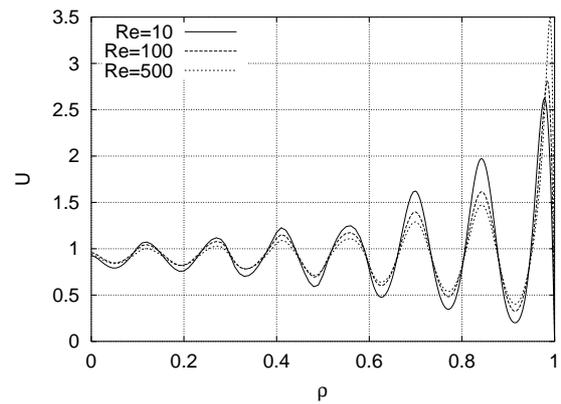
2.2.4 Résultats du modèle monodimensionnel

Profils de vitesse

Quelques résultats des différentes simulations effectuées avec le modèle monodimensionnel à différents nombre de Reynolds sont présentés sur les figures (2.2(a)) et (2.2(b)), pour les relations de porosité de Vortmeyer et Schuster et Cohen et Metzner respectivement. Pour ces simulations, nous avons utilisé la condition $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$, soit $\alpha = cte$.



(a) Modèle de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983)



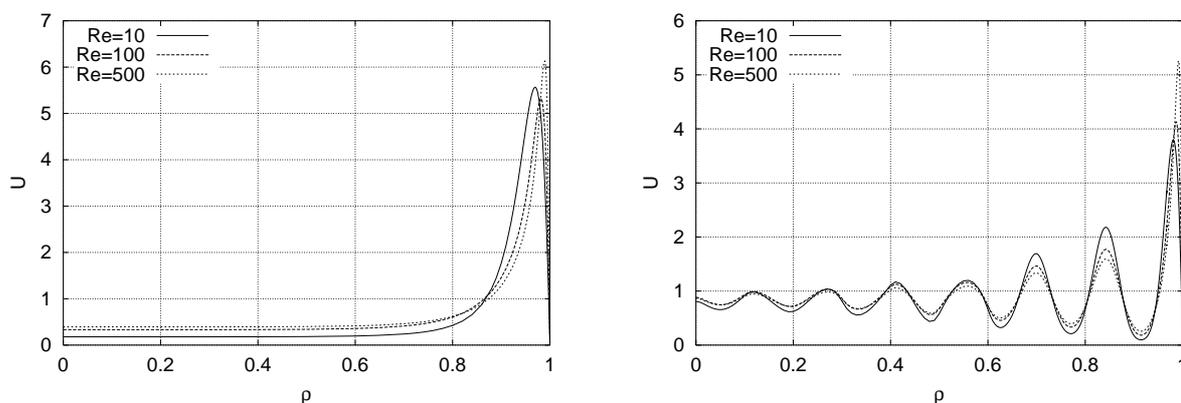
(b) Modèle de porosité de Cohen et Metzner (1981)

FIG. 2.2 – Profils de vitesse calculés par le modèle 1D, $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$

On obtient donc un profil de vitesse qui suit les variations de la porosité (sauf, bien sûr, au voisinage de la paroi), ce qui était attendu (McGreavy et coll., 1986). Les valeurs

maximales de la vitesse sont relativement élevées (de 2,5 à 3,5 fois la vitesse en fût vide u_0 pour un profil de porosité oscillant, à près de 4,5 fois u_0 pour un profil exponentiel). Pour un profil oscillant, le maximum de vitesse augmente avec Re_p et ne semble pas être limité. Le même comportement est observé pour le profil exponentiel, à ceci près que l'on obtient une évolution différente aux faibles vitesses où le maximum tend à diminuer avec Re_p avant d'augmenter à partir de $Re_p \simeq 50$. Il est aisé de constater ici la raideur du système près de la paroi, qui est gérée sans problème par la méthode des éléments frontières.

En prenant $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$, on obtient les profils présentés sur les figures (2.3(a)) et (2.3(b)).



(a) Modèle de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983)

(b) Modèle de porosité de Cohen et Metzner (1981)

FIG. 2.3 – Profils de vitesse calculés par le modèle 1D, $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$

On calcule des vitesses ayant le même comportement que précédemment, mais présentant des maxima nettement plus élevés. Ceci nous amène à penser que ce modèle (avec $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$) représente assez mal l'écoulement : des vitesses comme celles obtenues avec $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$ paraissent plus réalistes. Notons que l'utilisation de la formulation de Vafai et Tien pour l'équation de conservation de la quantité de mouvement conduit à $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$; dans la mesure où les résultats obtenus ainsi sont médiocres, on peut en conclure que l'équation proposée par Hsu et Cheng (1990) est à préférer.

Vérifications et comparaison des simulations aux données expérimentales

Nous disposons, suite aux expériences de Naderifar (1995), de gradients de vitesse à la paroi. On peut comparer le gradient pariétal moyen expérimental S_{exp} à celui obtenu par nos simulations. La figure (2.4) présente cette comparaison. On constate que, si le modèle $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$ donne des résultats plus proches de l'expérience, il s'en écarte tout de même beaucoup, en particulier aux forts nombres de Reynolds.

La figure (2.5) présente la perte de charge déduite du paramètre α' (soit $\frac{\Delta P}{L} = \frac{R_c^2}{\mu u_0} \alpha'$) comparée aux valeurs expérimentales. On constate une bonne adéquation de nos simula-

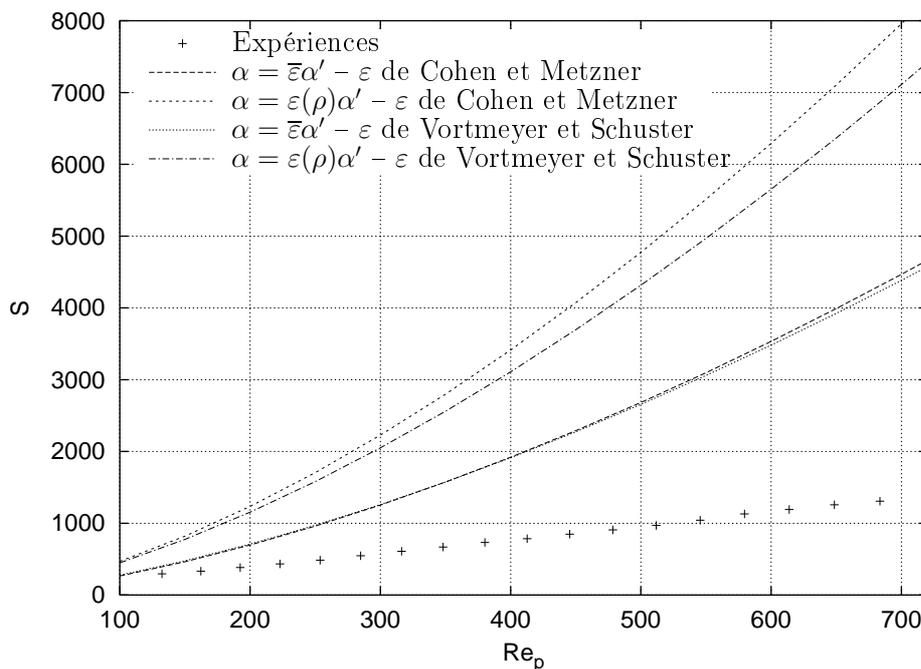


FIG. 2.4 – Gradients de vitesse à la paroi : comparaison des simulations aux mesures expérimentales

tions, en particulier de celles effectuées en utilisant un profil de porosité oscillant et en considérant la pression moyenne comme uniforme (soit $\alpha = \text{cte}$).

Cette comparaison permet de valider en partie le modèle, bien que celui-ci soit insuffisant pour assurer sa parfaite adéquation. Elle permet également de classer les modèles, celui correspondant à $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$ et ε oscillant conduit à de meilleurs résultats. Remarquons que l'utilisation de l'équation de Vafai et Tien (1981) est donc à déconseiller, puisqu'elle implique l'utilisation de $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$.

Par ailleurs, on obtient un meilleur accord entre les expériences et les simulations lorsque le modèle de porosité de Cohen et Metzner est utilisé, ce qui confirme le plus grand réalisme de cette relation.

Il faudrait pour valider totalement ce modèle disposer de mesures locales de vitesse, mesures dont les moyennes spatiales (sur un volume élémentaire représentatif) et temporelles seraient à comparer avec les vitesses simulées. De telles mesures peuvent être effectuées par exemple par anémométrie laser Doppler (LDA) ou par RMN.

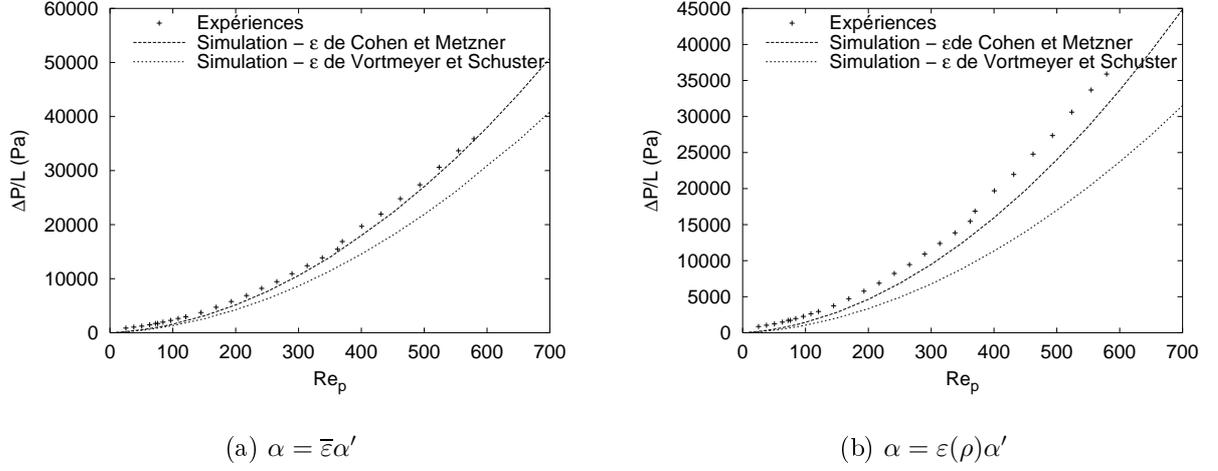


FIG. 2.5 – Comparaison des pertes de charges simulées (1D) et expérimentales

Comparaison aux données de la littérature

On peut comparer les résultats obtenus en résolvant notre modèle avec les simulations effectuées par Vortmeyer et Schuster (1983) (figure (2.6)), qui ont proposé l'expression analytique suivante comme représentation de leurs résultats :

$$U_z = \beta [1 - \exp(aR^*(1 - \rho)) (1 - nR^*(1 - \rho))] \quad (2.37)$$

$$\beta = \frac{R^{*2}}{2} \left[\frac{R^{*2}}{2} - \frac{(aR^* + 1)(nR^* - 1)}{a^2} + n \left(\frac{R^{*2}}{a} + \frac{2R^{*2}}{a^2} + \frac{2}{a^3} \right) + \frac{\exp aR^*}{a^2} \left(nR^* - 1 - \frac{2n}{a} \right) \right]^{-1} \quad (2.38)$$

$$a = \frac{4n}{4 - n} \quad (2.39)$$

$$R^* = \frac{R_c}{d_p} \quad (2.40)$$

avec

$$n = 112,5 - 26,31Re_p + 10,97Re_p^2 - 0,1804Re_p^3 \quad \text{pour } 0,1 \leq Re_p \leq 1 \quad (2.41a)$$

$$n = -1803 + 201,62(\ln Re_p + 4) - 3737\sqrt{\ln Re_p + 4} + 5399\sqrt[3]{\ln Re_p + 4} \quad \text{pour } 1 \leq Re_p \leq 1000 \quad (2.41b)$$

$$n = 27 \quad \text{pour } Re_p > 1000 \quad (2.41c)$$

Les résultats diffèrent sensiblement ; ceci est probablement dû à la méthode de calcul utilisée par ces auteurs (méthode variationnelle), qui est peu précise (Papageorgiou et Froment, 1995).

Giese et coll. (1998) ont mesuré les vitesses dans un lit fixe de 8 cm de diamètre rempli de billes de 8,6 mm par vélocimétrie laser-doppler. Nos résultats ne concordent

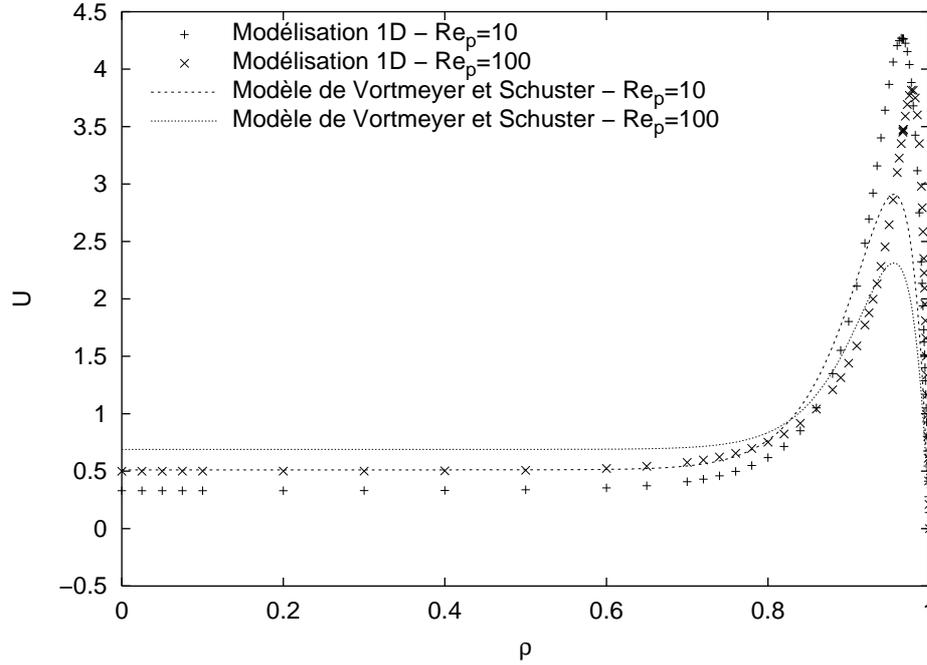


FIG. 2.6 – Comparaison des simulations avec le modèle de Vortmeyer et Schuster (1983)

pas quantitativement avec les profils de vitesse expérimentaux qu'ils ont obtenu. Ils ont pu modéliser leurs résultats en résolvant le même système que le nôtre avec un terme de Brinkman modifié, soit :

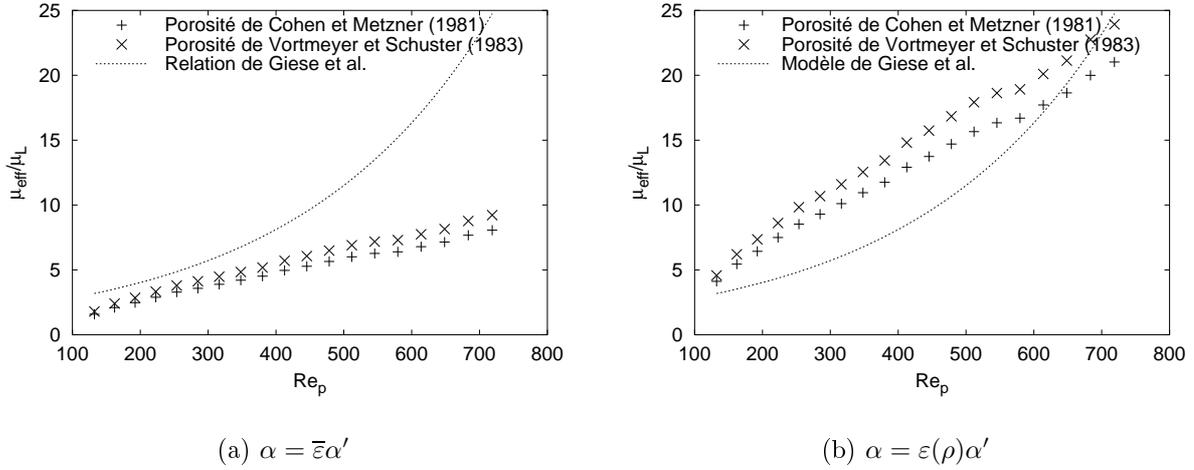
$$\frac{\mu_{\text{eff}}}{r} \frac{d}{dr} \left(r \frac{du}{dr} \right) - \phi u = \frac{\partial P}{\partial z} \quad (2.42)$$

et des conditions aux limites identiques aux nôtres. Le terme μ_{eff} a été déterminé par régression des données expérimentales. Les auteurs donnent pour un lit de sphères :

$$\frac{\mu_{\text{eff}}}{\mu_L} = 2,0 \exp(3,5 \cdot 10^{-3} Re_p) \quad (2.43)$$

Calcul de la viscosité de Brinkman

Si l'on considère le modèle établi en utilisant la viscosité effective, il est possible, en utilisant notre code de calcul 1D, de déterminer cette viscosité effective μ_{eff} . Il suffit de remplacer (2.21) par l'équation (2.42), et de comparer les valeurs calculées du gradient de vitesse S à celles obtenues expérimentalement. La viscosité effective μ_{eff} obtenue est présentée en fonction de Re_p sur la figure (2.7). On constate un fort écart entre nos valeurs et celles de Giese et coll.. Il serait intéressant de procéder à de nouvelles mesures dans notre réacteur, qui pourraient infirmer ou confirmer ces valeurs.

FIG. 2.7 – Viscosité effective μ_{eff}

Si l'on cherche une expression (empirique) de μ_{eff} , on peut donner pour le cas où $\alpha = \bar{\varepsilon}\alpha'$ et $130 \leq Re_p \leq 720$:

$$\frac{\mu_{\text{eff}}}{\mu_L} = 1,05 \cdot 10^{-2} Re_p + 0,496 \quad \text{pour } \varepsilon \text{ donné par Cohen et Metzner} \quad (2.44)$$

$$\frac{\mu_{\text{eff}}}{\mu_L} = 1,19 \cdot 10^{-2} Re_p + 0,598 \quad \text{pour } \varepsilon \text{ donné par Vortmeyer et Schuster} \quad (2.45)$$

Ces relations sont le résultat d'une simple régression sur les données, et ne peuvent être extrapolées.

L'usage de cette viscosité effective μ_{eff} introduit un paramètre supplémentaire et ne rend pas compte de la physique des phénomènes. Nous ne l'utiliserons donc pas pour des simulations ultérieures.

Quantification de l'effet de paroi

L'examen des profils de vitesse axiale prouve donc qu'une part importante du liquide passe dans la région proche de la paroi. Afin de quantifier cet effet de paroi, on calcule le by-pass de fluide par :

$$BP = \frac{2 \int_{R_c - d_p/2}^{R_c} 2\pi r u dr}{\pi d_p (2R_c - d_p/2) u_0} = \frac{2 \int_{1-d_S}^1 \rho U d\rho}{d_S (2 - d_S)} \quad (2.46)$$

soit le rapport du débit effectif au débit théorique dans le cas d'un écoulement de vitesse uniforme calculés pour une surface passante située entre la paroi et un demi diamètre de particule de celle-ci (on rappelle que $d_S = \frac{d_p}{D_c}$). La valeur du by-pass pour un écoulement uniforme est donc $BP = 1$.

La définition du by-pass dépend donc de la distance à la paroi considérée. Nous avons choisi $d_p/2$ car cette distance correspond au premier minimum de ε (position des centres

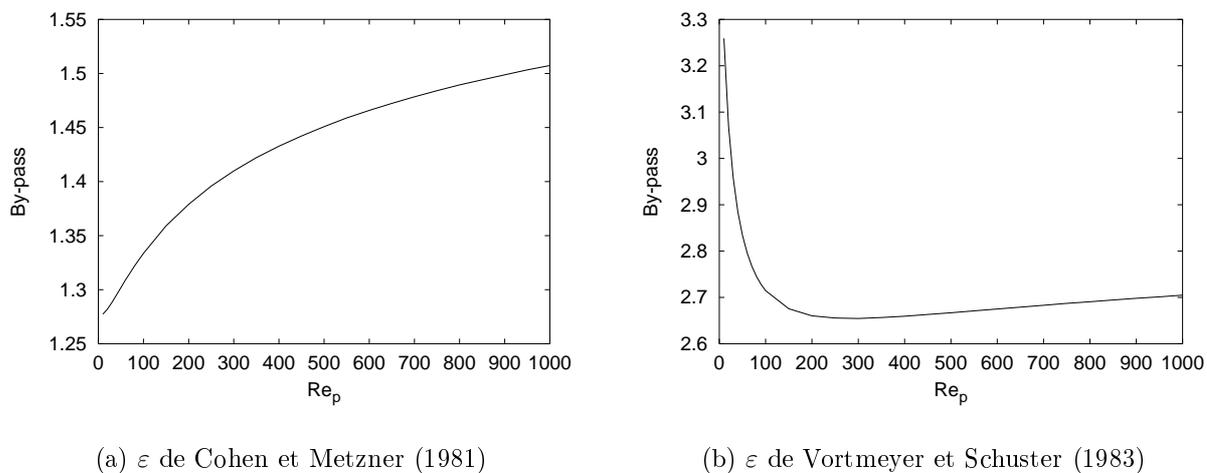


FIG. 2.8 – Quantification de l'effet de paroi

des sphères tangentes à la paroi), soit au minimum de vitesse pour le modèle de porosité de Cohen et Metzner.

Cette grandeur est présentée sur la figure (2.8) en fonction de Re_p pour notre système. L'augmentation de la vitesse tend à aggraver l'effet de paroi, ce qui n'était pas nécessairement visible par observation des profils de vitesse (le maximum de vitesse augmente avec Re_p mais la zone concernée diminue).

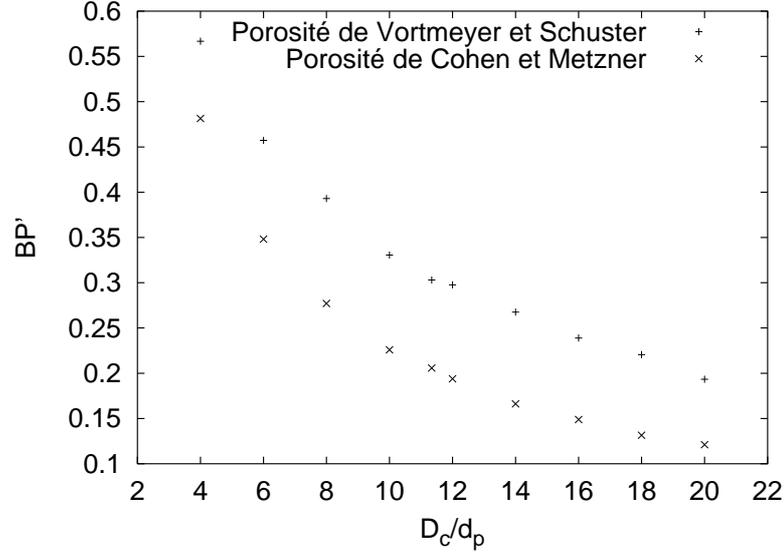
Si on calcule le by-pass pour des diamètres de colonnes différents, à Re_p constant, on constate qu'il varie peu avec D_c . Ce n'est pas nécessairement en désaccord avec le fait de négliger la présence de la paroi lorsque le rapport D_c/d_p devient élevé, car cet effet est très localisé, et peut donc être négligé lorsque l'on considère des grandeurs globales sur tout le réacteur, comme par exemple la perte de charge. De même, dans le cas d'une réaction catalytique intervenant dans tout le réacteur, l'effet de paroi pourra être négligé sous réserve d'un rapport D_c/d_p suffisant. Par contre, dans le cas de phénomènes à la paroi (transfert de chaleur, réaction), il semble qu'il faille systématiquement prendre en compte l'effet de celle-ci sur l'écoulement.

Une autre possibilité d'exprimer le by-pass serait de calculer le rapport du débit passant dans la même zone, mais rapporté au débit total dans le réacteur :

$$BP' = \frac{\int_{R_c-d_p/2}^{R_c} 2\pi r u dr}{\pi R_c^2 u_0} = 2 \int_{1-d_S}^1 \rho U d\rho = 2d_S(2-d_S)BP \quad (2.47)$$

Il quantifierait plus l'influence *globale* de la paroi. Les résultats obtenus pour BP' en fonction du diamètre de colonne pour différents nombres de Reynolds sont portés sur la figure (2.9).

On a bien alors une diminution de l'effet de la paroi lorsque le rapport D_c/d_p devient grand.

FIG. 2.9 – By-pass modifié pour différents rapports D_c/d_p

2.2.5 Modèle bidimensionnel

Les équations de transfert de quantité de mouvement ont également été résolues en tenant compte des vitesses radiales, et des variations axiales des variables (u_r , u_z et P). Ceci permet de modéliser l'établissement de l'écoulement à partir d'une distribution de fluide donnée en tête de réacteur et autorise également la prise en compte d'une éventuelle variation axiale de la porosité. Enfin, ce modèle tient compte des effets inertiels, ce qui n'était pas le cas du modèle monodimensionnel.

On considère les projections de l'équation (2.8) sur \mathbf{r} et \mathbf{z} . Les deux équations résultantes sont :

$$\rho_f \left(\frac{\partial u_r}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_r / \varepsilon}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_r / \varepsilon}{\partial z} \right) - \mu_f \left(\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial r u_r}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} \right) + \frac{\partial p}{\partial r} + \phi u_r = 0 \quad (2.48a)$$

$$\rho_f \left(\frac{\partial u_z}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_z / \varepsilon}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_z / \varepsilon}{\partial z} \right) - \mu_f \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \right] + \frac{\partial p}{\partial z} + \phi u_z = 0 \quad (2.48b)$$

avec :

$$u_r(r = R_c) = 0 \quad u_z(r = R_c) = 0 \quad (2.49a)$$

$$u_r(z = 0) = 0 \quad u_z(z = 0) = u_0 \quad (2.49b)$$

$$u_r(r = 0) = 0 \quad \left. \frac{\partial u_z}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 \quad (2.49c)$$

Formulation $\Omega - \Psi$

Dans la mesure où seul le profil de vitesse est recherché, on peut utiliser la formulation $\Omega - \Psi$, classiquement utilisée pour la résolution des écoulements bidimensionnels par des méthodes de différences finies (Saatdjian, 1998). Cette formulation a été proposée par Papageorgiou et Froment (1995), avec des équations légèrement différentes. Il s'agit tout simplement d'éliminer la pression des équations (2.48), en introduisant les deux variables ψ (fonction de courant) et ω (vorticité) définies par :

$$u_r = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z} \quad (2.50a)$$

$$u_z = \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \quad (2.50b)$$

$$\omega = \frac{\partial u_r}{\partial z} - \frac{\partial u_z}{\partial r} \quad (2.51)$$

On notera qu'exprimer u_r et u_z comme dérivées d'une fonction ψ satisfait automatiquement l'équation de continuité.

On exprime les relations entre ω et ψ par :

$$-r\omega = \frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} \quad (2.52a)$$

$$0 = \rho_f \left[\frac{\partial \omega}{\partial t} + \frac{1}{\varepsilon} \left(u_r \frac{\partial \omega}{\partial r} + u_z \frac{\partial \omega}{\partial z} \right) \right] - \mu_f \left(\frac{\partial^2 \omega}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \omega}{\partial r} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial z^2} \right) + \left(\frac{\mu_f}{r^2} + \phi - \frac{\rho_f u_r}{\varepsilon r} - \rho_f k_1 \right) \omega + u_r \frac{\partial \phi}{\partial z} - u_z \frac{\partial \phi}{\partial r} - \rho_f k_2 \quad (2.52b)$$

avec :

$$k_1 = \frac{2}{\varepsilon^2} \left(u_r \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} + u_z \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right) \quad (2.53a)$$

$$k_2 = \frac{u_r u_z}{\varepsilon^2} \left(-\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial r^2} + \frac{2}{\varepsilon} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \right)^2 + \frac{1}{r} \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} + \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} - \frac{2}{\varepsilon} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)^2 \right) + \frac{u_z^2 - u_r^2}{\varepsilon^2} \left(-\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial r \partial z} + \frac{2}{\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right) - \frac{u_r^2}{\varepsilon^2 r} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \quad (2.53b)$$

Sous forme adimensionnelle, ces équations se réécrivent :

$$-\rho \Omega = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \rho^2} + \frac{\partial \Psi}{\partial \rho} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \xi^2} \quad (2.54a)$$

$$0 = -C_1^2 \frac{\partial^2 \Omega}{\partial \xi^2} - \frac{\partial^2 \Omega}{\partial \rho^2} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial \Omega}{\partial \rho} + \frac{Re_p C_2}{\varepsilon} \left(U_r \frac{\partial \Omega}{\partial \rho} + C_1 U_z \frac{\partial \Omega}{\partial \xi} \right) + \left(\frac{1}{\rho^2} + \Phi - \frac{Re_p C_2 U_r}{\varepsilon \rho} - K_1 \right) \Omega - U_z \frac{\partial \Phi}{\partial \rho} + C_1 U_r \frac{\partial \Phi}{\partial \xi} - K_2 \quad (2.54b)$$

avec $\Omega = \frac{R_c \omega}{u_0}$ et $\Psi = \frac{\psi}{R_c^2 u_0}$ et :

$$K_1 = \frac{\rho_f u_0 R_c}{\mu_f \varepsilon^2} \left(U_R \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} + C_1 U_Z \frac{\partial \varepsilon}{\partial \xi} \right) \quad (2.55a)$$

$$K_2 = \frac{\rho_f u_0 R_c}{\mu_f} \left[\frac{U_R U_Z}{\varepsilon^2} \left(-\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \rho^2} + \frac{2}{\varepsilon} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)^2 + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} + C_1^2 \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \xi^2} - \frac{2C_1^2}{\varepsilon} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \xi} \right)^2 \right) + C_1 \frac{U_Z^2 - U_R^2}{\varepsilon^2} \left(\frac{2}{\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \xi} - \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \rho \partial \xi} \right) - \frac{C_1 U_R^2}{\varepsilon^2 \rho} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \xi} \right] \quad (2.55b)$$

Les conditions aux limites sur Ω et Ψ découlent de celles sur les vitesses, soit :

$$\xi = 0 \quad \Psi(\rho, 0) = \int_0^\rho U_Z(\rho', 0) d\rho' \quad (2.56a)$$

$$\Omega(\rho, 0) = -\frac{\Omega(\rho, \Delta\xi)}{2} - \frac{3\rho}{2} \left(\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \rho^2} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial \Psi}{\partial \rho} \right) - \frac{3C_1^2}{\rho \Delta\xi^2} (\Psi(\rho, \Delta\xi) - \Psi(\rho, 0)) \quad (2.56b)$$

$$\xi = 1 \quad \frac{\partial \Psi}{\partial \xi}(\rho, 1) = 0 \quad (2.56c)$$

$$\rho = 0 \quad \frac{\partial \Psi}{\partial \rho}(0, \xi) = 0 \quad (2.56d)$$

$$\frac{\partial \Omega}{\partial \rho}(0, \xi) = 0 \quad (2.56e)$$

$$\rho = 1 \quad \Psi(1, \xi) = \Psi(1, 0) \quad (2.56f)$$

$$\Omega(1, \xi) = -\frac{\Omega(1 - \Delta\rho)}{2} + 3 \frac{\Psi(1, \xi) - \Psi(1 - \Delta\rho, \xi)}{\Delta\rho^2(1 - \Delta\rho)} \quad (2.56g)$$

La valeur de Ω en $\xi = 1$ est calculée en résolvant l'équation (2.54b) avec $\frac{\partial \Psi}{\partial \xi} = 0$ (condition (2.56c)). La condition (2.56b) provient de l'équation (2.54a) couplée au développement limité de Ψ . Les conditions en $\xi = 1$ traduisent l'établissement de l'écoulement (elles ne sont donc valables que pour des valeurs suffisamment importantes de L_c).

Ces conditions ne prennent pas directement en considération la nullité de la vitesse axiale u_z à la paroi, ni la condition de symétrie sur u_r . Aussi, il ne sera pas étonnant d'obtenir des vitesses axiales en paroi différentes de 0 et des gradients de u_r non nuls au centre : ces différences sont dues à la limite de précision du calcul et peuvent être réduites en affinant le maillage suivant r .

On pourra facilement modifier les conditions d'entrée du fluide en corrigeant la condition (2.56a).

Papageorgiou et Froment (1995) proposent de ne pas utiliser de condition de sortie, arguant que le système est monodirectionnel, conformément à ce que propose Patankar (1980). A l'usage, on constate cependant qu'une telle condition est nécessaire pour assurer la convergence du système.

Résolution numérique

La résolution directe de ces équations posant de sérieux problèmes de convergence, nous avons choisi de considérer le terme transitoire (*i.e.* le terme (a) de (2.8) et de rechercher une solution stationnaire. Cette approche donne de bons résultats du point de vue de la convergence du code, au prix d'un temps de calcul pouvant être important.

Les équations ont été discrétisées sur un maillage de n_ρ points suivant la direction radiale par n_ξ points suivant la direction axiale. Nous appellerons i et j les indices des nœuds des maillages radiaux et axiaux. Puisque de fortes variations de la vitesse interviennent surtout en entrée du réacteur, un maillage plus fin a été nécessaire. Nous avons utilisé un maillage axial non linéaire de la forme :

$$\xi_j = A_\xi \exp(B_\xi j) - 1, \quad j = 0, n_\xi/2 \quad (2.57)$$

où le coefficient B_ξ est choisi, A_ξ étant alors ajusté pour avoir $\xi_{n_\xi/2} = 0,5$. Le reste du maillage est obtenu par symétrie par rapport à $\xi = 0,5$. Il aurait été utile d'utiliser de la même façon un maillage radial plus fin près de la paroi ; cependant, l'utilisation d'un maillage du même type que celui suivant ξ conduit à une divergence du code. C'est pourquoi le maillage suivant ρ a été pris régulier. Dans toutes les simulations présentées ici, on a pris $n_\rho = n_\xi = 201$, et $B_\xi = 0,05$.

L'algorithme de résolution est le suivant :

1. Calcul des valeurs de \mathbf{u} , k_1 , k_2 et Φ au pas de temps k ;
2. Calcul de Ψ^{k+1} par une méthode itérative (méthode de Gauss-Seidel) ;
3. Calcul de Ω^{k+1} par une méthode de direction alternée implicite (ADI) ;
4. Retour en 1 si $\sum_{i,j} |\Omega_{i,j}^{k+1} - \Omega_{i,j}^k| > \delta_\Omega |\Omega_{i,j}^k|$.

La valeur de δ_Ω est, pour les calculs présentés ici, de 5.10^{-6} .

2.2.6 Résultats

Profils de vitesses

On trouvera sur la figure (2.10) les profils de vitesse axiale en différentes positions axiales, pour des nombres de Reynolds de particule donnés. La figure (2.11) expose les vitesses radiales correspondantes. Les simulations présentées ont été réalisées avec les données physicochimiques et géométriques correspondant au travail de Naderifar (1995).

Une première vérification de la validité des résultats obtenus est faite en calculant le débit de liquide par intégration du profil de vitesse, et en le comparant au débit d'entrée ; on s'assure que l'écart entre les deux reste inférieur à 1% , quelle que soit la position axiale considérée.

On pourra ensuite comparer sur la figure (2.12) les résultats du modèle bidimensionnel à ceux du modèle monodimensionnel ; cette comparaison a été faite pour différents Re_p , entre les profils de vitesse 1D et les vitesses axiales calculées par le modèle 2D au centre du réacteur (soit en $\xi = 0,5$). A cette position, en effet, on vérifie que l'écoulement est pleinement établi, et que les vitesses radiales sont nulles. Les hypothèses du modèle monodimensionnel sont alors vérifiées.

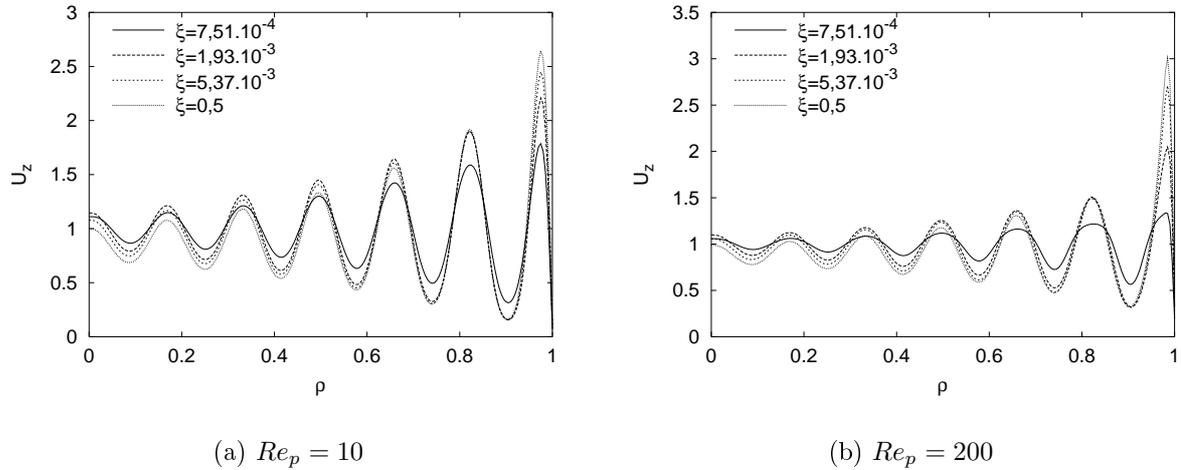


FIG. 2.10 – Profils axiaux de vitesse – Modèle 2D

On constate que les profils calculés en $\xi = 0,5$ concordent parfaitement avec ceux déterminés par le calcul monodimensionnel pour $\alpha = \text{cte}$, et non avec ceux pour lesquels $\alpha = \varepsilon(\rho)\alpha'$. Ceci constitue une première vérification de la cohérence des résultats du modèle 2D.

Les profils de vitesse axiales obtenus appellent les mêmes commentaires que ceux donnés par le modèle monodimensionnel. Pour ce qui est des vitesses radiales, on obtient une variation également fonction de la porosité, et une décroissance rapide suivant l'axe. Ces vitesses sont par contre relativement importantes (de l'ordre de u_0) près de l'entrée, où s'effectue la répartition du fluide. Par ailleurs, on peut constater (en particulier aux faibles nombres de Reynolds) que la vitesse radiale au centre du réacteur n'est pas nulle. Il s'agit là, comme nous l'avons déjà dit dans le paragraphe précédent, d'un problème inhérent à la formulation vorticité-fonction de courant (les conditions aux limites ne portant pas sur les vitesses mais sur des grandeurs dérivées, le calcul des valeurs des vitesses dépend fortement de la finesse du maillage).

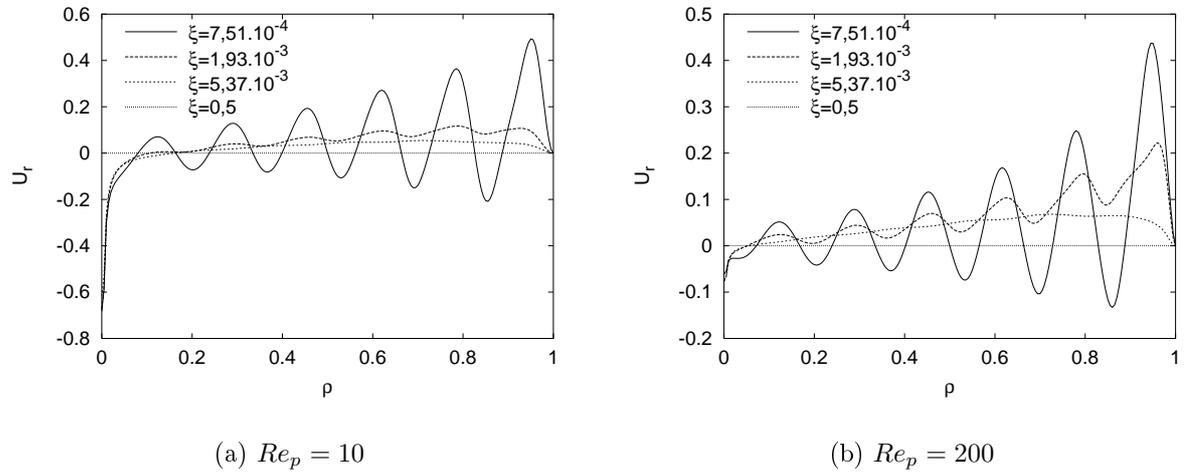


FIG. 2.11 – Profils radiaux de vitesse – Modèle 2D

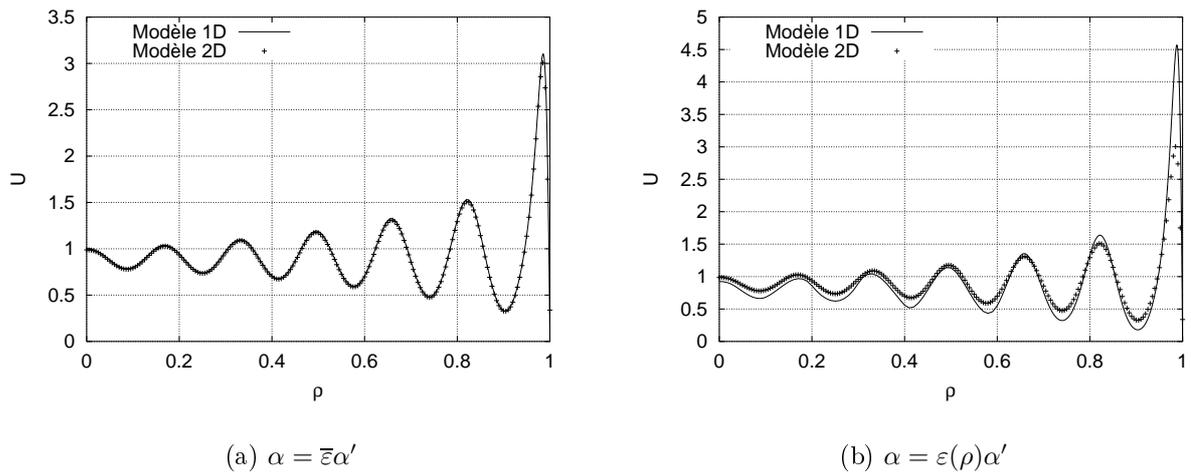


FIG. 2.12 – Comparaison des modèles 1D et 2D

Etablissement de l'écoulement

La possession d'un outil de simulation permet de connaître, dans les limites de cet outil, la répartition des vitesses suivant le type de distribution initiale. Notre code de calcul étant limité à un système à symétrie axiale et ne considérant que les coordonnées axiales et radiales, nous avons choisi de considérer un profil de distribution annulaire, soit :

$$\begin{cases} u = u_0 \rho_{lim}^2 & \rho \leq \rho_{lim} \\ u = 0 & \rho > \rho_{lim} \end{cases} \quad (2.58)$$

Ces relations correspondent à une vitesse uniforme sur la zone de distribution (comprise entre 0 et ρ_{lim}) et nulle ailleurs.

Nous avons ensuite recherché la distance d'établissement de l'écoulement, *i.e.* la position axiale ξ_j à partir de laquelle on peut considérer que les vitesses sont constantes. Le critère utilisé a été :

$$\max_{i=1,n} \left(1 - \frac{U_z(\rho_i, \xi_j)}{U_z(\rho_i, \xi_{j-1})} \right) < 10^{-3} \quad (2.59)$$

Les résultats sont portés dans le tableau (2.2)

TAB. 2.2 – Distance d'établissement de l'écoulement exprimée en diamètres de particules

Re_p	Distribution uniforme	Distribution annulaire		
		$\rho_{lim} = 0,8$	$\rho_{lim} = 0,6$	$\rho_{lim} = 0,4$
10	7	10	11	12
50	6	9	10	10
200	5	8	9	9
500	6	8	9	9

On constate que, dans les cas les plus défavorables, la distance d'établissement de l'écoulement n'excède pas une quinzaine de diamètres de particules, ce qui reste très inférieur à la longueur de la colonne. On retrouve ici la règle empirique qui considère l'écoulement comme établi au bout de 25 diamètres de particules. Notons que la définition d'écoulement établi est sujette à discussion, la valeur de 10^{-3} pour critère d'établissement étant tout à fait arbitraire.

La distribution du fluide joue un rôle dans la distance d'établissement, mais son influence n'est pas aussi importante qu'on aurait pu le penser. Rappelons toutefois que les simulations sont effectuées à Re_p constant, et donc à des vitesses en entrée d'autant plus importantes que ρ_{lim} est faible : l'effet géométrique de maldistribution est alors compensé par les effets inertiels.

Ces résultats sont en désaccord avec ceux proposés par Zoghلامي (1999), qui a observé une augmentation de la distance d'établissement de l'écoulement avec Re_p . Par contre, les ordres de grandeurs sont similaires.

Influence des différents termes de l'équation

On s'est intéressé à l'importance relative des différents termes de l'équation (2.8). Le tableau (2.3) présente l'importance relative des termes (b), (d) et (e) (soit les contributions inertielles, visqueuses et du milieu poreux) en moyenne sur tout le réacteur, pour trois nombres de Reynolds de particule et deux distributions de fluide : la distribution uniforme et une distribution annulaire où $\rho_{lim} = 0,6$ (voir § précédent).

On calcule en tous points du maillage les termes inertiels, poreux et visqueux (respectivement $b_{i,j}$, $e_{i,j}$ et $d_{i,j}$) par :

$$b_{i,j} = \rho_L \sqrt{\left(u_r \frac{\partial u_r / \varepsilon}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_r / \varepsilon}{\partial z}\right)^2 + \left(u_r \frac{\partial u_z / \varepsilon}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_z / \varepsilon}{\partial z}\right)^2} \quad (2.60a)$$

$$d_{i,j} = \mu \sqrt{\left(\frac{\partial^2 u_r}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2}\right)^2 + \left(\frac{\partial^2 u_z}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_z}{\partial r} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2}\right)^2} \quad (2.60b)$$

$$e_{i,j} = \sqrt{(\phi u_r)^2 + (\phi u_z)^2} \quad (2.60c)$$

Ces termes sont alors moyennés sur les points de la zone considérée (soit tout le réacteur pour les résultats présentés dans le tableau (2.3)).

TAB. 2.3 – Importance des différents termes de l'équation (2.8) sur tout le réacteur

Re_p	Distribution uniforme			Distribution annulaire $\rho_{lim} = 0,6$		
	(b)	(d)	(e)	(b)	(d)	(e)
10	6 %	8 %	86 %	8 %	13 %	79 %
100	4 %	6 %	90 %	7 %	11 %	82 %
200	3 %	5 %	92 %	6 %	9 %	85 %

Les contributions des termes advectifs et visqueux sont plus importantes dans le cas d'une distribution de fluide non uniforme. Ceci semble tout à fait normal, dans la mesure où un modèle n'en tenant pas compte ne pourra pas décrire la redistribution du liquide. Leur contribution globale reste cependant faible vis-à-vis de celle du terme dû à la présence du milieu poreux.

Nous estimons cependant que ces termes peu importants globalement peuvent être prépondérants sur des zones données, en particulier à l'entrée et à la paroi du réacteur. Nous avons donc séparé le réacteur en 3 zones distinctes présentées sur la figure (2.13). Le tableau (2.4) présente alors l'influence de chaque terme pour chacune de ces zones.

Les résultats obtenus pour une distribution initiale de liquide uniforme sont en accord avec ceux de Zoghiami (1999). Cependant, deux points diffèrent légèrement :

- près de la paroi, elle a déterminé une influence nettement plus importante du terme visqueux. Notons que la zone de paroi qu'elle a considérée est située à $r = 0,499$, soit $\rho = 0,998$ au lieu de $\rho = 0,98$ dans notre cas, ce qui peut expliquer la différence.
- à l'entrée du réacteur, nous déterminons une contribution relativement importante du terme inertiel. Là encore, il faut rappeler que Zoghiami n'a effectué son calcul que

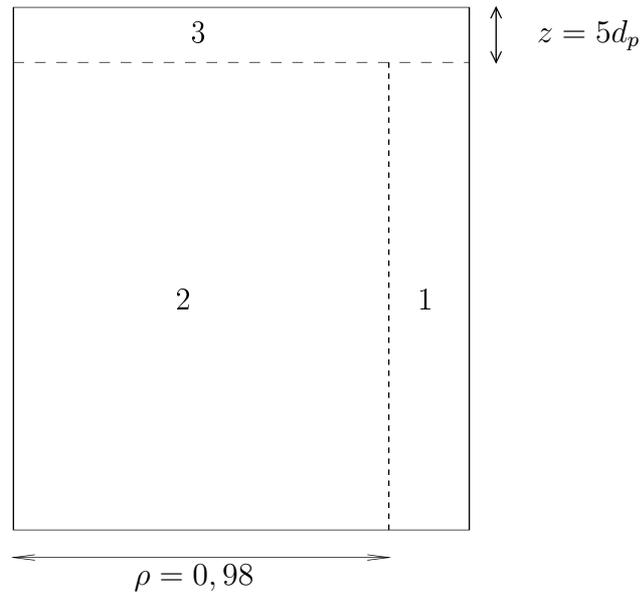


FIG. 2.13 – Zones de calcul des différents termes des équations de conservation de quantité de mouvement

sur un point situé en $\rho = 0,017$ alors que nous avons considéré une zone englobant tout le rayon.

On peut mettre en évidence de cette façon l'importance du terme inertiel à l'entrée du réacteur ; ceci tendrait à confirmer la nécessité de prendre en compte de façon exacte ce terme lors du calcul d'un écoulement, en particulier pour la modélisation de problèmes de distribution de fluide. Par contre, si l'on ne s'intéresse qu'à la zone où l'écoulement est établi, un code de calcul monodimensionnel est tout à fait adapté, et nettement moins exigeant en matière de puissance de calcul³. Par ailleurs, la prise en compte du terme de

³Sur le Pentium-II à 350 MHz où les calculs ont été effectués, on mesure des temps de l'ordre de quelques dizaines de secondes pour le modèle 1D et de quelques heures pour le modèle 2D

TAB. 2.4 – Importance des différents termes de l'équation (2.8) par zone

Re_p	Zone	Distribution uniforme			Distribution annulaire $\rho_{lim} = 0,6$		
		(b)	(d)	(e)	(b)	(d)	(e)
10	1	3 %	31 %	66 %	3 %	35 %	62 %
	2	2 %	2 %	96 %	2,5 %	2,5 %	95 %
	3	22 %	31 %	47 %	33 %	52 %	14 %
100	1	3 %	24 %	73 %	3 %	29 %	68 %
	2	1 %	1 %	98 %	2 %	1 %	97 %
	3	16 %	22 %	61 %	30 %	46 %	24 %

Brinkman (terme visqueux) n'a de véritable influence que dans une zone très proche de la paroi.

Calcul du profil de pression

On peut théoriquement, à partir du profil de vitesse ainsi obtenu, calculer le profil de pression par la résolution de l'équation :

$$\begin{aligned}
-\nabla^2 P = & u_r \frac{\partial \phi}{\partial r} + u_z \frac{\partial \phi}{\partial z} + \rho_f \left[\frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{u_r^2}{r^2} + \left(\frac{\partial u_r}{\partial r} \right)^2 + 2 \frac{\partial u_r}{\partial z} \frac{\partial u_z}{\partial r} + \left(\frac{\partial u_z}{\partial z} \right)^2 \right) \right. \\
& \left. - \frac{2}{\varepsilon^2} \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \left(u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_r}{\partial z} \right) - \frac{2}{\varepsilon^2} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \left(u_r \frac{\partial u_z}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_z}{\partial z} \right) \right] \quad (2.61) \\
& + \frac{u_r^2}{\varepsilon^2} \left(\frac{2}{\varepsilon} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \right)^2 - \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial r^2} \right) + \frac{u_z^2}{\varepsilon^2} \left(\frac{2}{\varepsilon} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)^2 - \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right) + 2 \frac{u_r u_z}{\varepsilon^2} \left(\frac{2}{\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} - \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial r \partial z} \right) \left. \right]
\end{aligned}$$

soumise aux conditions aux limites suivantes :

$$P(z = L_c) = P_s \quad (2.62a)$$

$$P(z = 0) = P(z = \Delta z) - \left. \frac{\partial P}{\partial z} \right|_{z=0} \Delta z \quad (2.62b)$$

$$\left. \frac{\partial P}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 \quad (2.62c)$$

$$P(r = R_c) = P(R_c - \Delta r) + \left. \frac{\partial P}{\partial r} \right|_{r=R_c} \Delta r \quad (2.62d)$$

La condition (2.62b) permet de ne pas spécifier la valeur de P en entrée de réacteur, et évite ainsi le recours à une corrélation. Quant à la condition (2.62d), elle est utilisée car la valeur de la dérivée de P est connue, ce qui permet de ne pas faire d'hypothèses supplémentaires.

Cependant, nous n'avons pas réussi à obtenir de résultats satisfaisants pour la pression en utilisant cette formulation. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés à la résolution directe des équations de continuité et de conservation de quantité de mouvement.

2.2.7 Formulation en volumes finis

Un inconvénient majeur de la formulation $\Omega - \Psi$ est, comme nous l'avons vu précédemment, de ne pas permettre le calcul de la pression, du moins de manière simple. Une telle formulation est par ailleurs peu adaptée à des écoulements en convection forcée, *i.e.* faiblement rotationnels. Pour toutes ces raisons, une autre méthode numérique de résolution, la méthode des volumes finis (Patankar, 1980), a été utilisée. Elle permet à la fois le calcul de la pression et la vérification locale de l'équation de continuité, et a l'avantage de travailler directement sur les variables u_r , u_z et P . L'application à notre réacteur a été réalisée en utilisant le code de calcul développé en collaboration avec Zoghlami (1999).

Principes généraux de la méthode de volumes finis

Afin d'exposer rapidement le principe de la méthode, considérons le cas général d'une équation de convection et diffusion d'une variable Φ (scalaire ou vectorielle) :

$$\frac{\partial \rho_F \Phi}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{J}_\Phi + S_\Phi \quad (2.63)$$

avec J_Φ la densité de flux de Φ due à la fois aux transferts convectifs et diffusifs, et S_Φ la vitesse de création de Φ par unité de volume. On a :

$$J_\Phi = \rho_f \Phi \mathbf{u} - \Gamma_\Phi \nabla \Phi \quad (2.64)$$

On discrétise le domaine de résolution en différents volumes V appelés *volumes de contrôle* – figure (2.14). Le point P représente le centre du volume de contrôle, les centres des volumes voisins sont désignés par les lettres E , N , W et S . Les faces correspondantes sont indicées respectivement e , n , w et s .

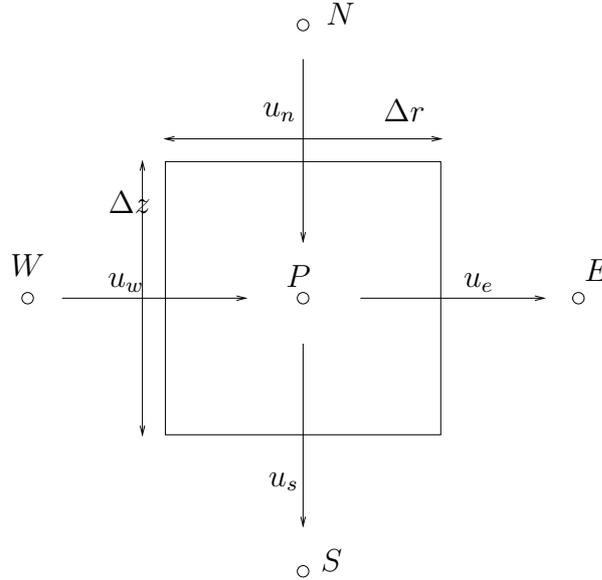


FIG. 2.14 – Représentation d'un volume de contrôle

On intègre l'équation (2.63) sur le volume V . On a alors :

$$\int_V \frac{\partial \rho_f \Phi}{\partial t} dV = - \int_S \mathbf{J}_\Phi d\mathbf{S} + \int_V S_\Phi dV \quad (2.65)$$

où S est la surface des faces du volume V .

On approxime ensuite les intégrales de volume par :

$$\int_V S_\Phi dV \simeq S_{\Phi_P} V \quad (2.66)$$

et les intégrales de surface par :

$$\int_{S_k} \mathbf{J}_\Phi d\mathbf{S} = \int_{S_k} J_\Phi dS \simeq J_{\Phi,k} S_k \quad (2.67)$$

où l'indice k désigne la face considérée (e, n, w, s).

Les intégrales de surface posent un problème particulier puisque les valeurs de J_Φ et de Φ ne sont pas connues sur chaque face. On a alors recours à des schémas d'interpolation pour l'estimation de Φ sur les faces ; par exemple, avec un maillage uniforme, on peut écrire simplement (sur la face e) :

$$\Phi_e = \frac{\Phi_P + \Phi_E}{2} \quad (2.68)$$

D'autres interpolations sont possibles (Patankar, 1980), le schéma utilisé pour la résolution de (2.8) est un schéma puissance où le flux J_Φ s'exprime (par exemple, ici sur la face e) :

$$J_{\Phi,e} S_e = F_e \Phi_P + \max \left(0, \left[1 - 0, 1 \left| \frac{F_e}{D_e} \right| \right] \right) \quad (2.69)$$

avec $D_e = \frac{\Gamma_\Phi S_e}{\delta x_e}$ et F_e le flux massique à travers S_e

Finalement, l'équation (2.8) discrétisée en volumes finis s'écrit :

$$a_P^r u_r(P) = \sum_{nb} a_{nb}^r u_r(nb) + b_r + (A_w^r P_w - A_e^r P_e) \quad (2.70)$$

$$a_P^z u_z(P) = \sum_{nb} a_{nb}^z u_z(nb) + b_z + (A_s^z P_s - A_n^z P_n) \quad (2.71)$$

où les coefficients a et b peuvent s'exprimer en fonction des différents termes de l'équation (2.8) exprimés sur les faces du volume de contrôle.

Le champ de pression est déterminé par la résolution de l'équation de conservation de la masse, en utilisant la méthode dite de *correction de pression*. Elle consiste à calculer un champ de vitesse (u_r^*, u_z^*) pour une pression P^* arbitraire, puis à corriger cette dernière de P' telle que $P = P^* + P'$ permette de calculer un champ de vitesse satisfaisant l'équation de continuité.

Dans les calculs présentés ici, c'est l'algorithme SIMPLER proposé par Patankar (1980) qui a été utilisé. Il est expliqué de façon très détaillée par Zoghلامي (1999, pp.205-211).

2.2.8 Résultats des simulations par la méthode des volumes finis

Comparaison des résolutions en différences finies et volumes finis

La comparaison des profils de vitesses obtenus pour les deux méthodes de résolution montre que, si les résultats sont tout à fait comparables en ce qui concerne les vitesses axiales, le meilleur contrôle des conditions aux limites assuré par la méthode de volumes finis permet d'obtenir des vitesses radiales plus correctes. En particulier, au centre du réacteur, les vitesses radiales obtenues sont effectivement nulles. La figure (2.15) illustre ces résultats.

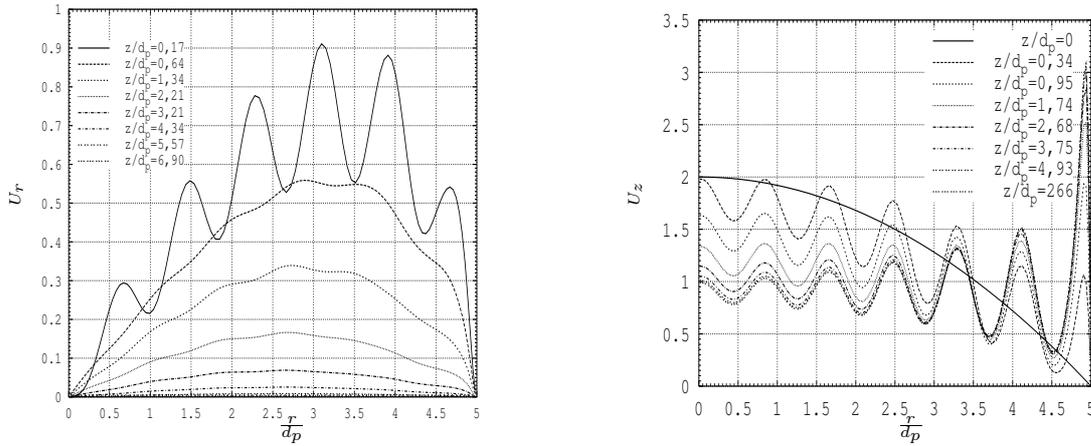
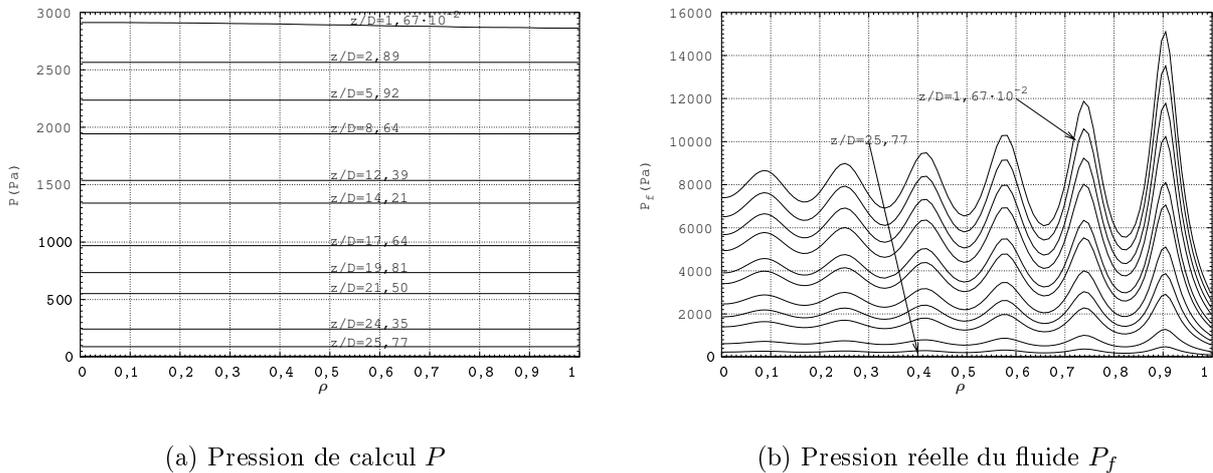


FIG. 2.15 – Profils de vitesses radiales et axiales obtenus par la méthode des volumes finis – Profil de porosité de Cohen et Metzner – $Re_p=200$

Profil de pression

On a vu plus haut que la détermination du profil de pression dans le réacteur n'avait pas été possible en utilisant la méthode de résolution en $\Omega - \Psi$; par contre, le code de calcul en volumes finis donne directement accès au champ de pression. Celui ci est présenté sur la figure (2.16). Ces résultats ont été obtenus en collaboration avec Zoghلامي (1999).



(a) Pression de calcul P

(b) Pression réelle du fluide P_f

FIG. 2.16 – Profils de pression simulés en écoulement de liquide seul - $Re_p = 200$ - ε de Cohen et Metzner

Le champ de pression de calcul P vérifie donc bien les hypothèses du modèle monodimensionnel, soit une invariance en fonction du rayon lorsque l'on se place loin de l'entrée. Au voisinage de l'entrée, le gradient de pression n'est pas nul, ce qui provoque la distribu-

tion radiale du fluide. Quant à la pression réelle du fluide P_f , elle suit le profil de porosité et présente *en moyenne* le même comportement que P .

2.3 Modélisation du transfert de matière

On présentera ici différents modèles de calcul de la concentration d'un électrolyte soumis à une réaction électrochimique sur une partie de la paroi. Le calcul du gradient pariétal de concentration obtenu donnera accès au coefficient de transfert de matière liquide-solide à la paroi k_d , lequel est accessible par l'expérience.

Comme dans le cas de l'écoulement du fluide, le transfert de matière peut être abordé à différentes échelles.

A l'échelle macroscopique, en considérant l'écoulement comme uniforme et en négligeant la distribution de porosité, le milieu poreux peut être considéré comme un réacteur piston parfait. Cette approche peut être raffinée par la prise en compte des phénomènes de dispersion axiale ou l'ajout dans le modèle de transfert de zones parfaitement agitées. Les différents paramètres peuvent être calés par des mesures de distribution des temps de séjour. Ce type d'approche, relativement simple et ne nécessitant pas de mesures lourdes, est communément employée en Génie des Procédés (Villermaux, 1993). Par contre, elle ne tient pas compte des phénomènes physiques intervenant dans les processus de transfert, puisque, comme on l'a vu en (2.2), la distribution des vitesses et des porosités est fortement modifiée par la présence de la paroi.

A l'inverse, on peut poser les équations de bilan de matière à l'échelle microscopique et calculer les champs de concentration par les équations de convection-diffusion dans un fluide. Le problème est d'autant plus complexe que la connaissance du champ de vitesses microscopique est alors requise : ces calculs sont, dans l'état actuel de la technique, irréalisables, même pour des réacteurs de laboratoire.

Donc, ici encore, nous avons privilégié l'approche à l'échelle homogène, qui considère le milieu poreux comme un continuum. Dans cette échelle, les lois de prise de moyenne sont appliquées aux équations de transport microscopiques. L'objectif est de déterminer le profil de concentration dans le réacteur, qui donnera accès au coefficient de transfert de matière à la paroi.

Les résultats expérimentaux utilisés sont ceux de Naderifar (1995), obtenus par mesure du courant limite sur une électrode de nickel platiné de longueur 5 cm (macroélectrode) placée à la paroi du réacteur. Le fluide utilisé est une solution de soude de concentration variant entre $500 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-3}$ et $4000 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-3}$, contenant $1 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-3}$ d'hexacyanoferrate de potassium III et $10 \text{ mol}\cdot\text{m}^{-3}$ d'hexacyanoferrate de potassium II.

2.3.1 Equations du modèle

A l'échelle microscopique, l'équation de transport s'écrit :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (u_{i,L}c) = \nabla \cdot (D\nabla c) \quad (2.72)$$

où $u_{i,L}$ est la vitesse intersticielle du liquide, c sa concentration et \mathcal{D} le coefficient de diffusion moléculaire.

Quintard et Whitaker (1993) donnent, pour l'équation moyennée :

$$\varepsilon \frac{\partial \langle c \rangle^L}{\partial t} + \mathbf{u}_L \nabla \langle c \rangle^L = \nabla \cdot (\varepsilon \underline{\underline{\mathbf{D}}}^* \cdot \nabla \langle c \rangle^L) \quad (2.73)$$

où $\varepsilon \underline{\underline{\mathbf{D}}}^* = \varepsilon \mathcal{D} \left(1 + \frac{1}{\varepsilon \mathcal{V}} \int_{\mathcal{A}_{LS}} \mathbf{n}_{LS} \mathbf{f} d\mathcal{A} \right) - \varepsilon \langle \tilde{u} f \rangle$ et $\langle c \rangle^L$ désigne la concentration moyenne dans la phase liquide.

La fermeture de l'équation (2.73) nécessite un certain nombre d'hypothèses, en particulier sur la périodicité du milieu poreux ; ainsi, dans notre cas, le calcul de $\underline{\underline{\mathbf{D}}}^*$ n'est pas possible. Nous proposons de considérer le tenseur de dispersion $\underline{\underline{\mathbf{D}}}^*$ comme diagonal, les deux éléments diagonaux valant \mathbb{D}_r et \mathbb{D}_z .

Dans toute la suite, dans un souci d'allègement des notations, nous utiliserons la notation c pour désigner $\langle c \rangle^L$. On peut donc écrire finalement, en l'absence de réaction chimique dans le sein des deux phases et en se plaçant au niveau de la surface réactive, l'équation « classique » de transfert de matière :

$$\varepsilon \frac{\partial c}{\partial t} + u_z \frac{\partial c}{\partial z} + u_r \frac{\partial c}{\partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \mathbb{D}_r \varepsilon(r) \frac{\partial c}{\partial r} \right) - \mathbb{D}_z \varepsilon(r) \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} = 0 \quad (2.74)$$

avec les conditions aux limites suivantes :

$$c(r, 0) = c_0 \quad (2.75)$$

$$c(R_0, z) = 0 \quad \text{pour } 0 \leq z \leq L_e \quad (2.76)$$

$$\left. \frac{\partial c}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 \quad \text{pour } 0 \leq z \leq L_e \quad (2.77)$$

Si la vitesse radiale est nulle, que le régime stationnaire est atteint et en supposant constants les coefficients de dispersion, on peut réécrire (2.74) sous forme adimensionnelle :

$$U_z \frac{\partial x}{\partial \xi'} - \frac{\varepsilon(\rho)}{Pe_z} \frac{\partial^2 x}{\partial \xi'^2} - \frac{1}{\rho} \frac{1}{Pe_r} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \varepsilon(\rho) \frac{\partial x}{\partial \rho} \right) = 0 \quad (2.78)$$

et les conditions aux limites :

$$x(\rho, 0) = 1 \quad (2.79)$$

$$x(1, \xi') = 0 \quad \text{avec } 0 \leq \xi' \leq 1 \quad (2.80)$$

$$\left. \frac{\partial x}{\partial \rho} \right|_{\rho=0} = 0 \quad \text{avec } 0 \leq \xi' \leq 1 \quad (2.81)$$

Pe_r et Pe_z sont les nombres de Péclet radiaux et axiaux :

$$Pe_r = \frac{u_0 R_c^2}{L_e \mathbb{D}_r} \quad (2.82)$$

$$Pe_z = \frac{u_0 L_e}{\mathbb{D}_z} \quad (2.83)$$

Calcul du coefficient de transfert pariétal à partir du profil de concentration

Les concentrations c dans le réacteur ne sont pas directement accessibles par l'expérience. Nous disposons par contre de mesure de coefficients de transfert de matière en paroi k_d . Au niveau de l'électrode de mesure, on peut relier ces grandeurs par :

$$-\mathcal{D} \left. \frac{\partial c(r, z)}{\partial r} \right|_{r=R_c} = k_d(z) (c(r = R_c, z) - c_0) \quad (2.84)$$

On prendra l'origine de la coordonnée axiale z à l'entrée de la zone réactive, qui est de longueur L_e .

Or $c(r = R_c) = 0$ puisque la mesure est effectuée en plaçant l'électrode à un potentiel correspondant au palier de diffusion. Par ailleurs, on peut considérer que c_0 ne varie pas au cours de la mesure, car le taux de conversion par passe est très faible. On a alors :

$$k_d(z) = \frac{\mathcal{D}}{c_0} \left. \frac{\partial c}{\partial r} \right|_{r=R_c} \quad (2.85)$$

et on peut ensuite intégrer $k_d(z)$ le long de l'électrode (entre $z = 0$ et $z = L_e$) pour obtenir le coefficient de transfert global k_d .

En exprimant ces relations en coordonnées adimensionnelles avec $\xi' = z/L_e$ et $x = c/c_0$, on a :

$$k_d = \frac{\mathcal{D}}{R_c} \int_0^1 \left. \frac{\partial x}{\partial \rho} \right|_{\rho=1} d\xi' \quad (2.86)$$

soit sous forme adimensionnelle :

$$Sh = \frac{k_d d_p}{\mathcal{D}} = \frac{d_p}{R_c} \int_0^1 \left. \frac{\partial x}{\partial \rho} \right|_{\rho=1} d\xi' \quad (2.87)$$

2.3.2 Modèle piston

La résolution complète de (2.78) est complexe. Il est donc intéressant de simplifier le problème pour ramener (2.78) à une équation possédant une solution analytique. On pourra alors vérifier partiellement les résultats numériques, voire n'utiliser que le modèle analytique si les hypothèses qui le sous-tendent sont vérifiées (l'objectif étant alors une plus grande rapidité de résolution pour une précision indépendante des différentes variables du calcul numérique).

En supposant une distribution uniforme de la porosité et du champ de vitesse (on rappelle que la seule vitesse considérée est axiale), on peut résoudre analytiquement le système (2.78)-(2.81). L'inconvénient de ce modèle est qu'il ne prend absolument pas en compte la présence de la paroi, et n'est donc pas physiquement représentatif de notre système.

On obtient pour la concentration adimensionnelle l'expression :

$$x = 2 \sum_{i=1}^{+\infty} \frac{[r_{2,i} e^{r_{2,i}} e^{r_{1,i} \xi'} - r_{1,i} e^{r_{1,i}} e^{r_{2,i} \xi'}] J_0(\lambda_i \sqrt{Pe_r / \bar{\varepsilon}} \rho)}{(r_{2,i} e^{r_{2,i} - r_{1,i}} e^{r_{1,i}}) \lambda_i \sqrt{Pe_r / \bar{\varepsilon}} J_1(\lambda_i \sqrt{Pe_r / \bar{\varepsilon}})} \quad (2.88)$$

avec :

$$r_1 = \frac{Pe_z}{2\bar{\varepsilon}} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4\bar{\varepsilon}\lambda_i^2}{Pe_z}} \right) \quad (2.89a)$$

$$r_2 = \frac{Pe_z}{2\bar{\varepsilon}} \left(1 + \sqrt{1 - \frac{4\bar{\varepsilon}\lambda_i^2}{Pe_z}} \right) \quad (2.89b)$$

Les λ_i sont fournis par la relation :

$$J_0 \left(\lambda_i \sqrt{\frac{Pe_r}{\bar{\varepsilon}}} \right) = 0 \quad (2.90)$$

On a alors :

$$k_d = 4 \frac{D}{D_c} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{r_{2,i}e^{r_{2,i}} - r_{1,i}e^{r_{1,i}}} \left[\frac{r_{2,i}e^{r_{2,i}}}{r_1^i} (e^{r_1^i} - 1) - \frac{r_{1,i}e^{r_{1,i}}}{r_2^i} (e^{r_2^i} - 1) \right] \quad (2.91)$$

En négligeant le terme de dispersion axiale, l'expression se simplifie en :

$$k_d = 4Pe_r \frac{D}{\bar{\varepsilon}D_c} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{\lambda_i^2} \left[1 - \exp\left(-\frac{\bar{\varepsilon}\lambda_i^2}{Pe_r}\right) \right] \quad (2.92)$$

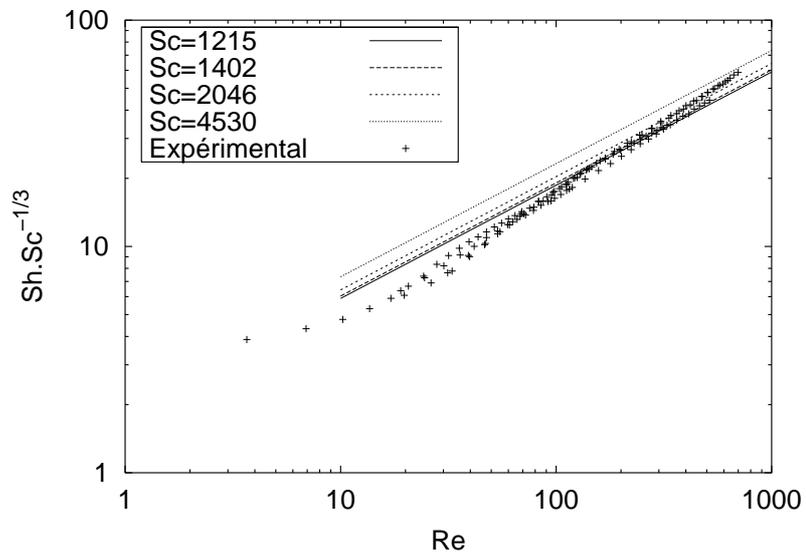
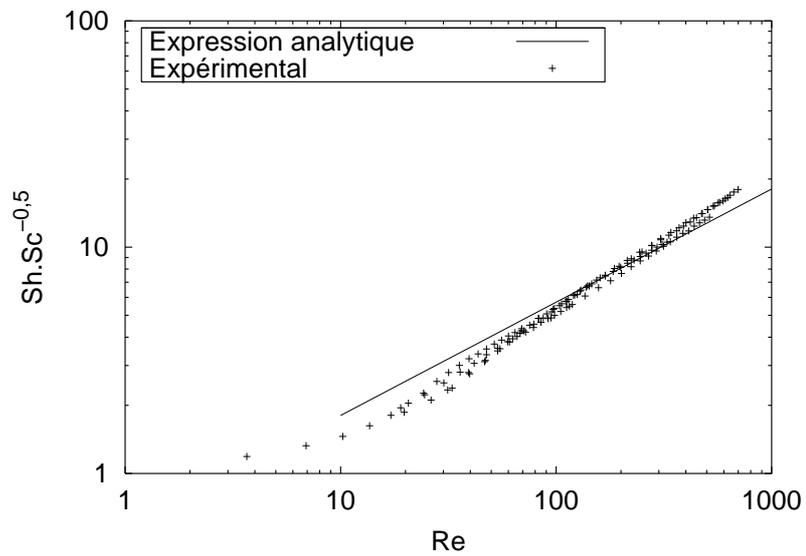
avec $J_0(\lambda_i) = 0$.

2.3.3 Résultats du modèle piston

Ce modèle simple conduit à des résultats satisfaisants quant à l'évaluation du coefficient de transfert global à la paroi, bien qu'il ne soit pas représentatif de la physique réelle des phénomènes (en particulier, hydrodynamiques). La figure (2.17) compare les résultats expérimentaux aux simulations, en présentant $Sh \cdot Sc^{-1/3}$ en fonction de Re_p . Ce groupe adimensionnel ne permet pas une représentation unique des résultats, et on lui a préféré un regroupement suivant $Sh \cdot Sc^{-0,5}$ (Lesage et coll., 2000). Cet exposant -0,5 du nombre de Schmidt est la conséquence de l'utilisation d'un modèle de renouvellement de surface. On peut également le déduire de la résolution transitoire des équations de conservation (quantité de mouvement et matière) dans la couche limite (Midoux, 1984), ce qui est notre cas.

Les hypothèses nécessaires à l'application de ce modèle (uniformité des vitesses et de la porosité) sont cependant erronées dans notre cas (effet de paroi marqué). Aussi, malgré les bons résultats obtenus, il nous faut chercher un modèle rendant mieux compte de la réalité.

L'existence d'une solution analytique relativement simple permettra cependant de valider les calculs numériques dans le cas d'un écoulement piston.

FIG. 2.17 – Résultats du modèle piston : $Sh \cdot Sc^{-1/3}$ vs Re_p FIG. 2.18 – Résultats du modèle piston : $Sh \cdot Sc^{-0.5}$ vs Re_p

2.3.4 Modèle à deux zones

Bien que présentant des résultats corrects, le modèle piston n'est pas physiquement acceptable, puisqu'il ne tient pas compte, entre autres, de l'effet de paroi.

On a donc cherché à obtenir un modèle plus réaliste, tout en conservant l'existence d'une solution analytique. Le problème de la prise en compte du profil de porosité, et du profil de vitesse résultant a été résolu en considérant deux zones : une zone centrale, indiquée c , et une zone pariétale indiquée p . On désignera par ρ_u le rayon correspondant à la limite des deux zones.

On suppose alors que la vitesse du fluide est constante sur chaque zone, de même que la porosité, et on résout l'équation de dispersion en considérant un modèle piston sans dispersion axiale sur chacune des deux zones.

$$\frac{\partial x_c}{\partial \xi} = \frac{1}{Pe_c} \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial x_c}{\partial \rho} \right) \quad (2.93a)$$

$$\frac{\partial x_p}{\partial \xi} = \frac{1}{Pe_p} \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial x_p}{\partial \rho} \right) \quad (2.93b)$$

(les nombres de Péclet sont calculés à l'aide des vitesses moyennes sur chaque zone)

Les conditions aux limites sont les conditions "classiques" (concentration constante en entrée, nulle à la paroi, condition de symétrie) données par les équations (2.75) à (2.77). et les conditions de continuité du flux de matière et de la concentration à la frontière entre les deux zones.

Mathématiquement, on a donc :

$$\xi = 0 \quad \forall \rho \quad x_c = x_p = 1 \quad (2.94a)$$

$$\rho = 1 \quad \forall \xi \quad x_p = 0 \quad (2.94b)$$

$$\rho = \rho_u \quad \forall \xi \quad x_c = x_p \quad (2.94c)$$

$$\text{et } \varepsilon_c \frac{\partial x_c}{\partial \rho} = \varepsilon_p \frac{\partial x_p}{\partial \rho} \quad (2.94d)$$

L'expression du coefficient de transfert de matière liquide-solide en paroi k_d est (Özsisik, 1980; Latifi et coll., 1998) :

$$k_d = \frac{D}{R_0} \sqrt{Pe_{r,2}} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{C_i}{\lambda_i} (A_i J_1(\lambda_i \sqrt{Pe_{r,p}}) + B_i Y_1(\lambda_i \sqrt{Pe_{r,p}})) (e^{-\lambda_i^2} - 1) \quad (2.95)$$

avec $K = \frac{D_{x,c}}{D_{r,p}} \sqrt{\frac{Pe_{r,c}}{Pe_{r,p}}}$, $v = \frac{u_c}{u_p}$, λ_i les racines de l'équation

$$K J_1(\gamma) p_0(\rho_u \eta, \eta) - J_0(\gamma) q_0(\rho_u \eta, \eta) = 0 \quad (2.96)$$

$$\text{où } \gamma = \lambda_i \rho_u \sqrt{Pe_{r,c}} \text{ et } \eta = \lambda_i \sqrt{Pe_{r,p}}$$

$$A_i = \frac{Y_0(\eta)J_0(\gamma)}{p_0(\rho_u\eta, \eta)}, B_i = -\frac{J_0(\eta)J_0(\rho_u\eta)}{p_0(\rho_u\eta, \eta)}, C_i = \frac{2(K\Phi_1 + \Phi_2)}{\eta(v\Phi_3 + \Phi_4)} \text{ et}$$

$$\begin{aligned} \Phi_1 &= \rho_u J_1(\gamma) \\ \Phi_2 &= A_i(J_1(\eta) - \rho_u J_1(\rho_u\eta)) + B_i(Y_1(\eta) - \rho_u Y_1(\rho_u\eta)) \\ \Phi_3 &= \rho_u^2(J_1^2(\gamma) + J_0^2(\gamma)) \\ \Phi_4 &= A_i[J_1^2(\eta) + J_0^2(\eta) - \rho_u^2(J_1^2(\rho_u\eta) + J_0^2(\rho_u\eta))] \\ &\quad + B_i[Y_1^2(\eta) + Y_0^2(\eta) - \rho_u^2(Y_1^2(\rho_u\eta) + Y_0^2(\rho_u\eta))] \\ &\quad + 2A_i B_i [J_0(\eta)Y_0(\eta) + J_1(\eta)Y_1(\eta) - \rho_u^2(J_0(\rho_u\eta)Y_0(\rho_u\eta) + J_1(\rho_u\eta)Y_1(\rho_u\eta))] \end{aligned}$$

On trouvera en annexe A le détail des calculs conduisant à ce résultat.

La porosité de chaque zone est déterminée par la moyenne de la fonction de porosité choisie. Les vitesses moyennes sur chaque zone peuvent être calculées en moyennant les profils de vitesse déterminés par la résolution de (2.21).

2.3.5 Résultats du modèle à deux zones

La figure (2.19) présente les résultats obtenus par application du modèle à deux zones (avec $\rho_u = 0,99$) sous la forme des variations de $Sh \cdot Sc^{-0,5}$ en fonction de Re_p . L'accord avec les mesures expérimentales est excellent, au prix du choix d'un paramètre, ρ_u . Les résultats des simulations sont là encore bien regroupés suivant la relation $Sh \cdot Sc^{-0,5} = f(Re_p)$. Il faut remarquer que le choix $\rho_u = 0,99$, qui conduit aux meilleurs résultats, est justifiable : il correspond pour tous les nombres de Reynolds considérés à une zone où la vitesse décroît (pas de changement dans la variation de vitesse), et où la concentration c varie (ce que l'on peut remarquer après examen des profils de concentrations calculés par le modèle monodimensionnel présenté en (2.3.6)). On peut alors penser que cette valeur de ρ_u dépend du rapport d_p/D_c et de la longueur de l'électrode.

2.3.6 Modèle monodimensionnel

Il est possible d'étendre le modèle précédent à un grand nombre de zones N . Pour un tel modèle à N zones, une solution analytique est théoriquement possible (mais nettement plus complexe). A la limite, on peut définir un profil de porosité (qui revient à considérer des zones de taille infinitésimale). Il n'est plus alors question de trouver de solution analytique au problème.

Aussi avons nous calculé les profils de concentration par une méthode numérique basée sur les différences finies. Un maillage très fin près de la paroi est nécessaire (voir §2.3.7). Ce modèle est le plus complet dont nous disposons pour décrire le transfert de matière dans les conditions des expériences. On utilise le profil de vitesse axiale calculé par le modèle monodimensionnel décrit en (2.2.3), la vitesse radiale étant supposée nulle.

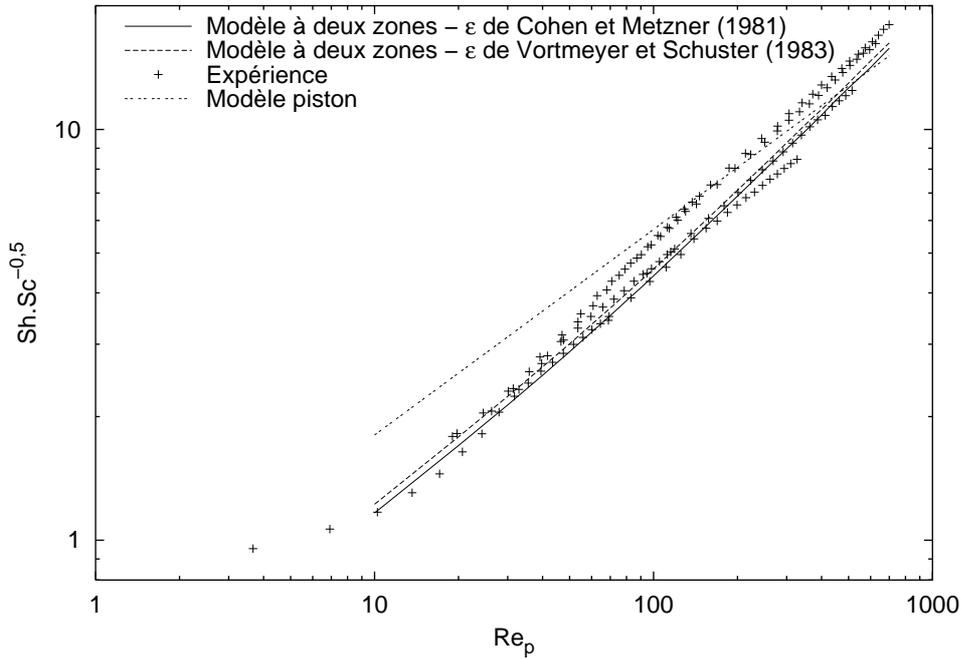


FIG. 2.19 – Modèle de transfert de matière à deux zones

2.3.7 Résultats du modèle monodimensionnel

Nous avons en premier lieu validé le code de calcul en comparant les résultats obtenus pour une porosité constante et une vitesse uniforme aux résultats du calcul analytique pour le modèle piston.

La figure (2.20) présente les résultats numériques obtenus pour divers maillages suivant ρ , le maillage suivant ξ étant uniforme et comprenant $n_\xi=200$ points. L'étude de l'influence de n_ξ a montré qu'un nombre plus important de points n'a pas d'influence sur la qualité des résultats. Dans le cas d'un maillage uniforme, même comprenant un grand nombre de points, l'écart avec le calcul analytique est important.

L'utilisation d'un maillage non uniforme suivant la direction radiale est donc absolument nécessaire. La figure (2.21) présente celui que nous avons utilisé. Il est important de noter que la finesse minimale du maillage dépend fortement de la vitesse du fluide. D'autres calculs non présentés ici montrent une influence similaire du nombre de Schmidt. On conservera comme règle la nécessité de disposer d'un maillage dont le pas près de la paroi sera de l'ordre de $\frac{d_p}{ReSc}$.

Des simulations menées en absence de dispersion axiale, en utilisant $\mathbb{D}_r = \mathcal{D}_L$ et pour différents profils de porosité mènent aux résultats présentés figure (2.22). Les résultats obtenus sont, au contraire du modèle piston, bien représentés en utilisant le groupement adimensionnel $Sh \cdot Sc^{-1/3}$.

Notons la faible influence du profil de porosité sur la valeur finale de k_d . Ceci n'est pas surprenant dans la mesure où les transferts ont lieu très près de la paroi, soit à un endroit où la porosité calculée par les deux modèles est sensiblement identique.

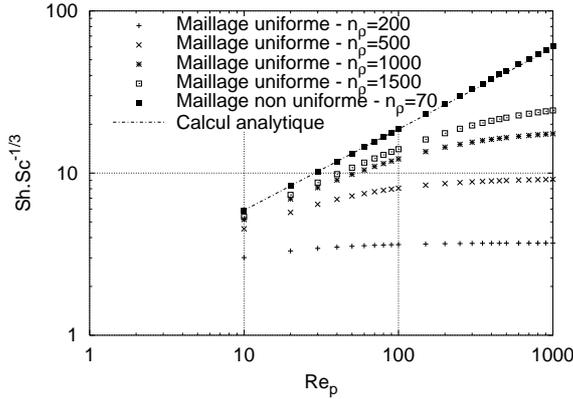


FIG. 2.20 – Comparaison des calculs effectués avec différents maillages

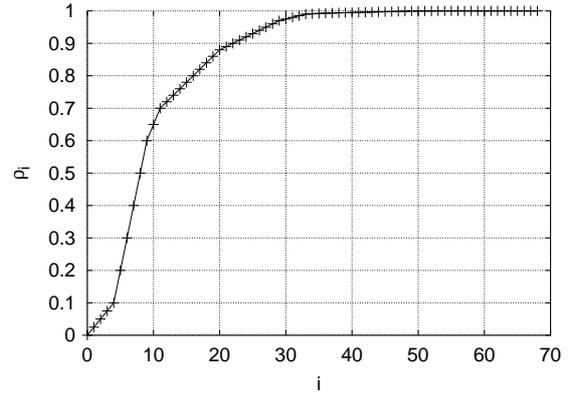


FIG. 2.21 – Discrétisation de la variable de position radiale ρ

L'écart important entre les valeurs simulées et les résultats expérimentaux, mis en évidence sur la courbe (2.22), peut être attribué à deux facteurs :

- la condition de non glissement à la paroi, qui est une hypothèse du modèle hydrodynamique, n'est pas nécessairement correcte (Lesage et coll., 2000). Elle conduirait à des vitesses trop faibles au voisinage de la paroi ;
- la dispersion axiale n'a pas été prise en compte.

L'ajout d'un terme de dispersion axiale, qui tend à augmenter la valeur du coefficient de transfert à la paroi, devrait donc mener à un calcul plus correct de k_d . On pourrait alors expliquer l'augmentation de l'écart entre les valeurs mesurées et simulées par la part croissante de la turbulence dans le coefficient de dispersion axiale. Malheureusement, ce calcul est nettement plus difficile à réaliser par des méthodes de différences finies. En effet, le système diverge lorsqu'un maillage trop fin près de la paroi est utilisé en conjonction avec des valeurs réalistes de \mathbb{D}_z . Or, comme on l'a vu plus haut, un tel maillage est nécessaire pour obtenir un résultat correct. Il faut donc utiliser d'autres méthodes numériques, ce que nous n'avons pas pu faire faute de temps. Par exemple, Ziolkowski et Szustek (1989) ont utilisé des méthodes d'éléments finis pour résoudre un tel système.

2.3.8 Résolution de l'équation complète (bidimensionnelle)

La résolution de l'équation (2.74) complète ne pose pas de difficultés particulières lorsque le profil de vitesse bidimensionnel est connu. Cependant, une telle résolution n'amènerait aucune amélioration du modèle puisque le profil de vitesse au niveau de l'électrode correspond parfaitement au profil obtenu par le modèle 1D. Ce modèle n'a donc pas été utilisé ici, mais il serait intéressant de réaliser des expériences similaires avec une électrode située dans la zone d'établissement du régime (soit à l'entrée de la colonne). Ce type d'expériences pourrait apporter une meilleure compréhension des phénomènes de distribution de fluide pour un investissement mineur.

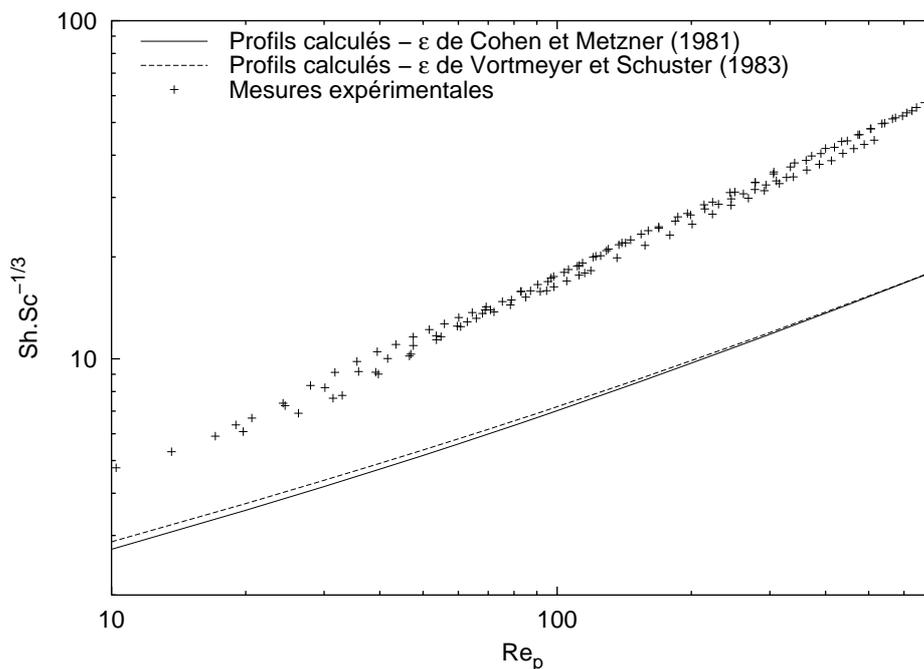


FIG. 2.22 – Modèle de transfert de matière 1D complet

2.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons présenté les équations régissant le transfert de quantité de mouvement en milieu poreux. Nous avons proposé diverses méthodes de résolution, et calculé les champs de vitesses et de pression dans notre réacteur. L'effet de la présence de la paroi du réacteur sur l'hydrodynamique a été particulièrement étudié, grâce à l'utilisation de relations entre la porosité et la position radiale dans le lit. La comparaison entre les mesures de pertes de charge et les résultats des simulations montre qu'un modèle de porosité présentant des oscillations amorties représente mieux la réalité. Il semble que l'effet de paroi doit être systématiquement pris en compte dans les phénomènes de transfert à la paroi.

Les mesures effectuées par Naderifar (1995) ont été utilisées afin de valider en partie le profil de vitesse obtenu. Il découle de la comparaison avec ces expériences que le modèle utilisé est encore insuffisant pour représenter correctement l'écoulement. L'ajout d'un terme de viscosité effective, pour l'heure encore empirique, donne de bons résultats mais n'est qu'un palliatif : des mesures plus approfondies seront donc nécessaires. En particulier, nous verrons au chapitre 4 que l'écoulement présente des caractéristiques turbulentes qui n'ont pas été prises en compte dans les modèles hydrodynamiques.

Le calcul des contributions des différents termes des équations de transfert de quantité de mouvement a par ailleurs montré l'importance des termes convectifs, souvent négligés, dans la distribution du fluide.

D'autre part, nous avons utilisé différents modèles de transfert de matière afin de calculer le transfert pariétal dans le cas d'une réaction électrochimique à la paroi du réacteur. Des modèles possédant des solutions analytiques ont été particulièrement recherchés. Il

s'ensuit que, si le modèle piston parfait donne des résultats satisfaisants, les modèles les plus complexes (et physiquement plus exacts) doivent être adjoints de termes de dispersion axiale pour représenter correctement nos mesures. L'importance de la dispersion axiale n'a pas pu être évaluée à cause des difficultés numériques induites par sa prise en compte lors de la résolution de l'équation de transfert de matière. Nous avons par ailleurs montré la nécessité d'utiliser des maillages irréguliers pour effectuer cette modélisation.

Chapitre 3

Modélisation de l'écoulement biphasique

Ceux qui veulent connaître ma tactique doivent obéir aux principes suivants selon lesquels ils peuvent pratiquer la Voie : [...]

4. Connaître la voie de chaque métier, et non se borner à celui que l'on exerce soi-même

Miyamoto MUSASHI – Gorin-no-Sho

3.1 Introduction

Les réacteurs à lit fixe et à écoulement gaz/liquide à co-courant vers le bas sont largement répandus dans l'industrie, notamment dans l'industrie pétrolière, les synthèses chimique et électrochimique, la lutte contre la pollution de l'air et des eaux résiduaire et dans la bio-industrie. Le choix de ce type de réacteur est principalement motivé par des considérations hydrodynamiques (pas de phénomène d'engorgement). La maldistribution de la phase liquide est un facteur important dans la conception, le fonctionnement et l'extrapolation de ces réacteurs. L'inefficacité du distributeur du liquide et/ou l'anisotropie du garnissage peuvent être à l'origine de la maldistribution du liquide dont les principales conséquences sont :

- l'absence de réaction dans les parties du garnissage court-circuitées par le liquide, conduisant ainsi à des performances inférieures à celles attendues.
- pour les réactions très exothermiques, des points chauds apparaissent en l'absence de la phase liquide qui joue aussi le rôle d'évacuateur de chaleur.

Ce type de problème est bien connu de l'ingénierie pétrolière, puisqu'on le retrouve (sous des formes légèrement différentes) dans la modélisation des écoulements pétrole-eau-vapeur dans les nappes souterraines (Gagneux et Madaune-Tort, 1996). On le rencontre également dans tous les phénomènes de séchage des solides (Perré et Degiovanni, 1990). L'application des résultats de ces diverses études aux réacteurs chimiques n'est cependant pas aisée.

L'objectif de cette étude est donc de développer un modèle phénoménologique pour la distribution des phases liquide et gazeuse dans un réacteur gaz/liquide à lit fixe et à écoulement à co-courant vers le bas. On s'est essentiellement intéressé au cas des écoulements de faibles interactions, c'est à dire lorsque les interactions entre le gaz et le liquide sont négligeables.

3.2 Revue bibliographique succincte

Peu de travaux ont été menés sur la modélisation des écoulements dans un trickle-bed, du moins quant à la résolution numérique des équations de transport.

Sáez et Carbonell (1985) ont proposé l'utilisation des lois de Darcy généralisées, et ont formulé les équations de conservation moyennes.

Grosser et coll. (1988) ont repris ces équations générales. Ils les ont utilisées pour déterminer les points de transition entre les régimes ruisselant et pulsé, en recherchant les limites de stabilité et d'existence des solutions stationnaires des équations. Ils ne les ont cependant pas résolues.

Propp (1998) a mis au point un code de calcul permettant la détermination des champs de pression et de saturation ; il s'est cependant surtout intéressé à l'aspect numérique du problème, utilisant par exemple des algorithmes multigrilles pour réduire les temps de calcul et affiner les résultats. Il a étudié l'effet d'une variation légère de la porosité en paroi (passant de 0,35 à 0,41).

Récemment, Jiang et coll. (1999) ont modélisé l'écoulement pour un lit bidimensionnel à l'aide d'un modèle de cellules. Ils ont trouvé un bon accord entre leurs résultats et le calcul par résolution des équations de conservation dans le cas d'un écoulement de gaz pratiquement seul. Ils ont particulièrement étudié l'effet du mouillage préliminaire du lit et de la distribution de liquide. Par contre, ils n'ont considéré qu'une variation de porosité aléatoire fluctuant d'environ 10 % autour d'une moyenne de 0,4.

3.3 Mise en équation du problème

3.3.1 Equations en variables primaires

La mise en équation du système découle de l'application des lois de conservation. En premier lieu, on considère les équations de conservation de la masse sur chaque phase :

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho_L s_L)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_L \mathbf{u}_L) = 0 \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho_G s_G)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_G \mathbf{u}_G) = 0 \quad (3.2)$$

On a aussi les équations de bilan de quantité de mouvement moyennées pour chaque phase L et G (Sáez et Carbonell, 1985) :

$$\rho_L \left(\frac{\partial \mathbf{u}_L}{\partial t} + (\mathbf{u}_L \nabla) \mathbf{u}_L \right) = \nabla P_L - \rho_L \mathbf{g} + \mathbf{F}_L + \nabla \cdot \left(\underline{\underline{\tau}}_L + \underline{\underline{\mathbf{R}}}_L \right) \quad (3.3)$$

$$\rho_G \left(\frac{\partial \mathbf{u}_G}{\partial t} + (\mathbf{u}_G \nabla) \mathbf{u}_G \right) = \nabla P_G - \rho_G \mathbf{g} + \mathbf{F}_G + \nabla \cdot \left(\underline{\underline{\tau}}_G + \underline{\underline{\mathbf{R}}}_G \right) \quad (3.4)$$

où \mathbf{F}_f représente la résultante des forces exercées sur le fluide f par unité de volume de réacteur. Les termes $\underline{\underline{\tau}}_f$ et $\underline{\underline{\mathbf{R}}}_f$ sont respectivement les tenseurs des contraintes visqueuses et pseudo-turbulentes, et seront considérés comme négligeables dans toute la suite de ce travail.

3.3.2 Formulation pression - saturation

Forces exercées sur le fluide

Dans le cas d'un écoulement de faibles interactions (ruisselant), les seules forces exercées sur chaque fluide sont celles dues à la présence du milieu poreux :

$$\mathbf{F}_L = \mathbf{F}_{L-S} = \frac{\mu_L}{k_{rL}} \left[\frac{A\mu_L(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} + \frac{B\rho_L(1-\varepsilon)|\mathbf{u}_L|}{\varepsilon^3 d_p} \right] \mathbf{u}_L \quad (3.5)$$

$$\mathbf{F}_G = \mathbf{F}_{G-S} = \frac{\mu_G}{k_{rG}} \left[\frac{A\mu_G(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} + \frac{B\rho_G(1-\varepsilon)|\mathbf{u}_G|}{\varepsilon^3 d_p} \right] \mathbf{u}_G \quad (3.6)$$

avec A et B les constantes de l'équation d'Ergun, et k_{rL} et k_{rG} les perméabilités relatives telles que définies par Sáez et Carbonell (1985), soit :

$$k_{rL} = \left(\frac{s_L - s_L^0}{1 - s_L^0} \right)^{2,43} \quad (3.7)$$

$$k_{rG} = (1 - s_L)^{4,8} \quad (3.8)$$

La rétention liquide résiduelle s_L^0 est estimée à l'aide de la formule suivante (Sáez et coll., 1986) :

$$s_L^0 = \frac{1}{\varepsilon(20 + 0,9E\ddot{o})} \quad (3.9)$$

Si on cherche à prendre en compte l'interaction gaz-liquide, les forces dues à cette interaction viennent s'ajouter à celles exercées par le solide, soit :

$$\mathbf{F}_L = \mathbf{F}_{L-S} + \mathbf{F}_{L-G} \quad (3.10)$$

$$\mathbf{F}_G = \mathbf{F}_{G-S} + \mathbf{F}_{G-L} \quad (3.11)$$

avec

$$\mathbf{F}_{G-L} = s_L(1 - s_L)X_{G-L}(\mathbf{u}_G - \mathbf{u}_L) \quad (3.12)$$

où X_{G-L} peut être estimé à l'aide de l'équation d'Ergun (Jiang et coll., 1999).

Cependant, la prise en compte de l'interaction entre les deux fluides implique de ne plus utiliser les lois de Darcy généralisées ; la formulation en pression-saturation présentée n'est donc plus possible, et il faut alors résoudre les équations (3.1) à (3.4) directement. Ce travail est en cours, mais n'a pas encore abouti.

Dans tout ce qui suit, nous supposons donc que nous travaillons en régime ruisselant.

Lois de Darcy généralisées

Considérons les relations (3.3) et (3.4). Si on néglige les termes convectifs, visqueux et pseudo-turbulents, on est ramené à :

$$\nabla P_L - \rho_L \mathbf{g} + \mathbf{F}_L = 0 \quad (3.13)$$

$$\nabla P_G - \rho_G \mathbf{g} + \mathbf{F}_G = 0 \quad (3.14)$$

En ne prenant en compte que les interactions fluide-solide, que l'on suppose décrites par les relations (3.5) et (3.6), on aboutit aux lois de Darcy généralisées, qui s'écrivent alors :

$$\mathbf{u}_L = \frac{K_L k_{rL}}{\mu_L} (\nabla P_L - \rho_L \mathbf{g}) \quad (3.15)$$

$$\mathbf{u}_G = \frac{K_G k_{rG}}{\mu_G} (\nabla P_G - \rho_G \mathbf{g}) \quad (3.16)$$

où K_L et K_G sont les perméabilités intrinsèques du milieu poreux :

$$K_L = A \frac{(1 - \varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} \mu_L + B \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon^3 d_p} \rho_L |\mathbf{u}_L| \quad (3.17)$$

$$K_G = A \frac{(1 - \varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} \mu_G + B \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon^3 d_p} \rho_G |\mathbf{u}_G| \quad (3.18)$$

Equations en pression-saturation

En couplant (3.15) et (3.16) aux équations de conservation de la masse (3.1) et (3.2), on obtient 4 équations pour 6 inconnues (\mathbf{u}_G , \mathbf{u}_L , P_G , P_L , s_G , s_L). On peut cependant utiliser deux relations supplémentaires :

$$s_L + s_G = 1 \quad (3.19)$$

et

$$P_G = P_L + P_C \quad (3.20)$$

où P_C est la pression capillaire. L'équation (3.19) traduit la présence des deux phases qui occupent entièrement le volume laissé libre par le solide.

Finalement, on obtient un système de deux équations à deux inconnues (s_L et P_G) :

$$\varepsilon \frac{\partial s_L}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{F} = -\nabla \cdot (H \nabla P_C) \quad (3.21)$$

$$\nabla \cdot [(\alpha_L + \alpha_G) \nabla P_G] = \nabla \cdot [\alpha_L \nabla P_C + (\alpha_G \rho_G + \alpha_L \rho_L) \mathbf{g}] \quad (3.22)$$

avec

$$\alpha_L = K_L \frac{k_{rL}}{\mu_L} \quad (3.23)$$

$$\alpha_G = K_G \frac{k_{rG}}{\mu_G} \quad (3.24)$$

$$H = \frac{\alpha_L \alpha_G}{\alpha_L + \alpha_G} \quad (3.25)$$

$$\mathbf{F} = \frac{\alpha_L}{\alpha_L + \alpha_G} \mathbf{u}_T - H(\rho_L - \rho_G) \mathbf{g} = \frac{\alpha_L(\mathbf{u}_T - \alpha_G(\rho_L - \rho_G) \mathbf{g})}{\alpha_L + \alpha_G} \quad (3.26)$$

$$u_T = u_L + u_G = -(\alpha_L + \alpha_G) \nabla P_G - (\alpha_L \rho_L + \alpha_G \rho_G) g + \alpha_L \nabla P_C \quad (3.27)$$

En régime ruisselant, on peut estimer la pression capillaire par :

$$P_C = \sqrt{\frac{\varepsilon}{K}} \sigma_L \mathcal{J}(s_L) \quad (3.28)$$

où \mathcal{J} est la fonction de Leverett (Leverett, 1941) :

$$\mathcal{J}(s_L) = 0,48 + 0,036 \ln \left(\frac{1 - s_L}{s_L} \right) \quad (3.29)$$

et K la perméabilité du milieu au sens de Darcy, soit :

$$K = \frac{\varepsilon^3 d_p^2}{A(1 - \varepsilon)^2} \quad (3.30)$$

En réalité, cette fonction correspond à ce que l'on appelle la courbe de drainage, soit la pression capillaire mesurée à partir d'une colonne noyée où on augmente régulièrement le débit de gaz. En effet, la pression capillaire présente un fort phénomène d'hystérèse (que l'on retrouve dans les réacteurs où les effets capillaires sont importants), et il existe donc différentes valeurs de \mathcal{J} pour une même saturation (selon que l'on considère l'injection de liquide dans une colonne vide ou de gaz dans une colonne mouillée, p.ex.). Le choix de l'utilisation de la fonction correspondant au drainage a été fait par Grosser et coll. (1988), qui ont prouvé sa bonne adéquation avec les phénomènes observés.

Notons que dans notre cas, les valeurs de P_C sont faibles – figure (3.1) – et n'ont donc pas une grande influence sur l'écoulement.

3.3.3 Conditions aux limites

A la paroi du réacteur, la vitesse radiale des fluides est nulle (paroi imperméable). On a donc $\frac{\partial P_G}{\partial r} = 0$ en utilisant les lois de Darcy (3.16). La condition limite pour l'équation de saturation en $r = R_c$ est que le flux de saturation à travers la paroi est nul, soit $\frac{\partial s_L}{\partial r} = 0$.

Le système admet une symétrie axiale, on postulera donc que l'on a, en $r = 0$, les conditions $\frac{\partial P_G}{\partial r} = 0$ et $\frac{\partial s_L}{\partial r} = 0$.

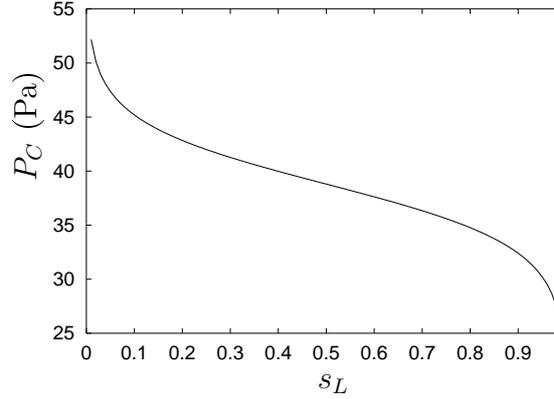


FIG. 3.1 – Pression capillaire P_C en fonction de la saturation de liquide pour notre système

En sortie de colonne, la pression s'équilibre avec l'atmosphère, donc $P_G = P_{\text{atm}}$. On pose par ailleurs $\frac{\partial P_C}{\partial z} = 0$, qui se réarrange en $\frac{\partial s_L}{\partial z} = -\frac{\frac{\partial P_C}{\partial \varepsilon}}{\frac{\partial P_C}{\partial s_L}} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z}$, soit $\frac{\partial s_L}{\partial z} = 0$ en l'absence de pression capillaire ou de variation axiale de ε .

En récapitulant ces conditions :

$$\text{En } r = R_c \quad \frac{\partial P_G}{\partial r} = 0 \quad \frac{\partial s_L}{\partial r} = 0 \quad (3.31)$$

$$\text{En } z = L_c \quad P_G = P_{\text{atm}} \quad \frac{\partial s_L}{\partial z} = 0 \quad (3.32)$$

$$\text{En } r = 0 \quad \frac{\partial P_G}{\partial r} = 0 \quad \frac{\partial s_L}{\partial r} = 0 \quad (3.33)$$

A l'entrée du réacteur ($z = 0$), la vitesse des fluides est spécifiée, et on peut en déduire s_L et P_G sur chaque volume de contrôle (puisque l'on utilise la méthode des volumes finis) *via* les lois de Darcy étendues :

$$u_{L,i} A_i = -\alpha_{L,i} \nabla P_{L,i} - \rho_L g \quad (3.34)$$

$$u_G A = -\sum_{i=1}^N A_i \alpha_{G,i} \nabla P_{G,i} - \rho_G g \quad (3.35)$$

L'indice i désigne ici un volume de contrôle, A_i étant la surface passante de ce volume et A la surface passante totale.

3.4 Méthodes de résolution

3.4.1 Première approche

Dans un premier temps, nous avons tenté de résoudre (3.21) et (3.22) directement, en utilisant une discrétisation en différences finies, suivant le schéma suivant :

1. Calcul d'une pression estimée \tilde{P}_G
2. Calcul d'une saturation par résolution de (3.21) en utilisant \tilde{P}_G
3. Retour en (1) jusqu'à ce que les grandeurs estimées soient égales aux grandeurs calculées

Cette approche a été un échec, aucune convergence du système ne pouvant être obtenue. *A posteriori*, cela n'a rien d'étonnant vu la nature de l'équation (3.21) qui génère des solutions présentant des fronts de propagation (équation parabolique). Il faut donc en premier lieu pouvoir gérer la présence de ce front de saturation. Par ailleurs, la méthode numérique globale de différenciation avant n'est pas inconditionnellement stable; il faut donc employer un autre schéma numérique de discrétisation.

3.4.2 Seconde approche

Formulation du problème numérique et algorithme de résolution

On note i et j les indices d'espace suivant r et z , k l'indice de temps. Le demi-indice $(i + 1/2, j - 1/2, \dots)$ correspond à une face du volume de contrôle considéré.

L'équation (3.21) est discrétisée de la façon suivante, selon un schéma de Crank-Nicholson :

$$\varepsilon \frac{s_L^{k+1} - s_L^k}{\Delta t} + \frac{1}{r} \frac{r_{i+1/2} F_{r_{i+1/2,j}}^{k+1/2} - r_{i-1/2} F_{r_{i-1/2,j}}^{k+1/2}}{\Delta r} + \frac{F_{z_{i,j+1/2}}^{k+1/2} - F_{z_{i,j-1/2}}^{k+1/2}}{\Delta z} = \frac{1}{2} \nabla \cdot (H^k \nabla P_C^k) + \frac{1}{2} \nabla \cdot (H^{k+1} \nabla P_C^{k+1}) \quad (3.36)$$

Le schéma de Crank-Nicholson est semi-implicite; ses avantages sont d'être inconditionnellement stable, tout en donnant une bonne précision sur les résultats.

On notera que le calcul des flux \mathbf{F} sur les faces du volume de contrôle nécessite la connaissance des saturations sur ces mêmes faces.

L'algorithme de résolution est le suivant (les variables \tilde{P}_C , \tilde{H} , $\tilde{\alpha}$ sont calculées à l'aide des valeurs prédites \tilde{s}_L et \tilde{P}_G) :

1. On résout l'équation (3.22), obtenant ainsi P_G^k . On peut alors en déduire la vitesse totale u_T au pas de temps k par la relation (3.27);
2. On calcule la saturation au demi pas de temps suivant $s_L^{k+1/2}$ sur les faces du volume de contrôle. On utilise pour cela la méthode de Godunov, que nous détaillerons plus loin.
3. On calcule la vitesse u_T au pas de temps $k + 1/2$. Cette opération est réalisée en deux temps :
 - (a) Prédiction d'une saturation \tilde{s}_L au temps $k + 1$ par résolution de :

$$\varepsilon \frac{\tilde{s}_L - s_L^k}{\Delta t} = -\nabla \cdot \mathbf{F}(s_L^{k+1/2}, u_T^k) - \frac{1}{2} \nabla \cdot (\tilde{H} \nabla \tilde{P}_C) - \frac{1}{2} \nabla \cdot (H^k \nabla P_C^k) \quad (3.37)$$

(b) Calcul d'une pression estimée \tilde{P}_G^{k+1} au temps $k+1$ à l'aide de \tilde{s}_L par l'équation :

$$-\nabla \cdot [(\tilde{\alpha}_G + \tilde{\alpha}_L)\nabla \tilde{P}_G] = -\nabla \cdot [(\tilde{\alpha}_L \rho_L + \tilde{\alpha}_G \rho_G)\mathbf{g}] - \nabla \cdot (\tilde{\alpha}_L \nabla \tilde{P}_C) \quad (3.38)$$

On calcule ensuite \tilde{u}^T par l'équation (3.27) en utilisant \tilde{s}_L et \tilde{P}_G . On a alors $u_T^{k+1/2} = \frac{1}{2}(u_T^k + \tilde{u}_T^{k+1})$

4. La saturation réelle au temps $k+1$ est enfin calculée par :

$$\varepsilon \frac{s_L^{k+1} - s_L^k}{\Delta t} = -\nabla \cdot \mathbf{F}(s_L^{k+1/2}, \mathbf{u}_T^{k+1/2}) - \frac{1}{2} \nabla \cdot (H^k \nabla P_C^k) - \frac{1}{2} \nabla \cdot (H^{k+1} \nabla P_C^{k+1}) \quad (3.39)$$

Dans ce qui suit, nous allons revenir rapidement sur le calcul des saturations sur les faces du volume de contrôle (par souci d'allègement des notations, nous noterons la saturation liquide s et la pression P).

Méthode de Godunov

Le calcul des flux sur les faces du volume de contrôle est réalisé en utilisant la méthode de Godunov de second ordre. Celle-ci consiste en une extrapolation préliminaire des saturations sur les faces par un développement en séries de Taylor pour un premier demi-pas de temps. Ceci conduit à deux valeurs de la saturation notées s^+ et s^- , chaque face étant commune à deux cellules. Le développement est de la forme :

$$s_{i+1/2,j}^{k+1/2} = s_{i,j}^k + \frac{\Delta t}{2} \frac{\partial s}{\partial t} + \frac{\Delta r}{2} \frac{\partial s}{\partial r} \quad (3.40)$$

Après évaluation des dérivées de s , on aboutit à :

$$s_{i+1/2,j}^{k+1/2} = s_{i,j}^k + \frac{\Delta r}{2} \left(1 - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta r} \frac{\partial F_r}{\partial s} \right) \frac{\partial s}{\partial r} - \frac{\Delta t}{2} [\nabla \cdot (H^k \nabla P_C^k)] + \frac{\Delta t}{2\varepsilon} \left(-\frac{F_r}{r} - \frac{\partial F_z}{\partial z} - \frac{\partial F_r}{\partial \varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} - \frac{\partial F_r}{\partial u_{T,r}} \left(-\frac{\partial u_{T,r}}{\partial z} - \frac{u_{T,r}}{r} \right) \right) \quad (3.41)$$

et

$$s_{i,j+1/2}^{k+1/2} = s_{i,j}^k + \frac{\Delta z}{2} \left(1 - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta z} \frac{\partial F_z}{\partial s} \right) \frac{\partial s}{\partial z} - \frac{\Delta t}{2} [\nabla \cdot (H^k \nabla P_C^k)] + \frac{\Delta t}{2\varepsilon} \left(-\frac{F_r}{r} - \frac{\partial F_r}{\partial r} - \frac{\partial F_z}{\partial \varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} - \frac{\partial F_z}{\partial v_{T,z}} \frac{\partial u_{T,z}}{\partial z} \right) \quad (3.42)$$

Les différents termes de (3.41) et (3.42) sont ensuite évalués comme suit :

1. $\frac{\partial s}{\partial r} \simeq \frac{\Delta s^{VL,M}}{\Delta r}$
2. $\frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \simeq \frac{\Delta \varepsilon^{VL}}{\Delta r}$

3. $\frac{\partial F}{\partial \varepsilon}$ est évalué numériquement
4. $\frac{\partial F}{\partial s}$ et $\frac{\partial F}{\partial u_T}$ peuvent être calculés analytiquement

Δs^{VL} représente la pente de Van Leer, définie par :

$$\Delta s^{VL} = \begin{cases} \min(2|\Delta s^G|, |\Delta s^C|, 2|\Delta s^R|) & \text{si } (s_{i+1,j} - s_{i,j})(s_{i,j} - s_{i-1,j}) > 0 \\ 0 & \text{autrement} \end{cases} \quad (3.43)$$

où

$$\Delta S^C = \frac{s_{i+1,j} - s_{i-1,j}}{2} \quad (3.44)$$

$$\Delta S^G = s_{i,j} - s_{i-1,j} \quad (3.45)$$

$$\Delta S^R = s_{i+1,j} - s_{i,j} \quad (3.46)$$

$\Delta s^{VL,M}$ est la pente de Van Leer modifiée au second ordre, définie par $\Delta s^{VL,M} = \text{fonc}(\chi)\Delta s^{VL}$, où $\text{fonc}(\chi)$ est une fonction de lissage continue qui annule la pente au voisinage du front de saturation :

$$\text{fonc}(\chi) = \begin{cases} 1 & \text{si } \chi < \chi^- \\ \chi^* & \text{si } \chi^- < \chi < \chi^+ \\ 0 & \text{si } \chi > \chi^+ \end{cases} \quad (3.47)$$

avec :

$$\chi^* = \frac{\chi^- - \chi^+}{\chi^- - \chi^+} \quad (3.48)$$

$$\chi = \frac{|s_{i+1,j} - s_{i-1,j}|}{\max(|s_{i+1,j} - s_{i-1,j}|, |s_{i+2,j} - s_{i-2,j}|)} \quad (3.49)$$

Le paramètre χ caractérise la présence du front de saturation ; si $\chi < \chi^-$, on se situe dans une région régulière, alors que $\chi > \chi^+$ correspond à la région contenant le front de saturation. Propp (1998) propose d'utiliser $\chi^- = 0,65$ et $\chi^+ = 0,75$, valeurs retenues pour les simulations développées ici.

Il reste à calculer les dérivées spatiales de F . Considérons à titre d'exemple le calcul de $\frac{\partial F_z}{\partial z}$. On peut écrire, en reprenant les notations de Patankar (1980) – voir figure (2.14) :

$$\frac{\partial F_z}{\partial z} \simeq \frac{F_z^s - F_z^n}{\Delta z} \quad (3.50)$$

On résout ensuite le problème de Riemann pour calculer F .

Osher (1984) propose de prendre comme solution de ce système le flux correspondant à un extremum de F . Il exprime donc le flux F sur une face du volume de contrôle par :

$$F(s^+, s^-) = \begin{cases} \min [F(s^+), F(s^-)] & \text{si } s^+ < s^- \\ \max [F(s^+), F(s^-)] & \text{si } s^+ > s^- \end{cases} \quad (3.51)$$

Ce résultat n'est cependant pas valable s'il existe un point critique s^c correspondant à un extremum qui ne serait pas situé en s^- ou s^+ . Une recherche d'un éventuel s^c est donc faite en résolvant $F'(s^c) = 0$. Dans ce cas, le flux sur les faces est calculé par :

$$F(s^+, s^-) = \begin{cases} \min [F(s^+), F(s^-), F(s^c)] & \text{si } s^+ < s^- \\ \max [F(s^+), F(s^-), F(s^c)] & \text{si } s^+ > s^- \end{cases} \quad (3.52)$$

3.5 Résultats obtenus

Ces résultats sont issus des travaux de Souadnia (2000), qui a également mis au point le code de calcul dans le cadre de son post-doctorat. Nous présentons des résultats obtenus en négligeant la variation radiale des variables (modèle 1D), puis en la prenant en compte (modèle 2D). Les simulations en 2D ont été menées en utilisant soit une porosité uniforme, soit le profil proposé par Vortmeyer et Schuster (1983).

3.5.1 Établissement de l'écoulement

Modèle monodimensionnel

L'objectif est de modéliser le comportement transitoire du fluide suite à l'injection de débits donnés dans un milieu de saturation connue (et inférieure à la saturation obtenue en régime permanent pour ces conditions opératoires).

La figure (3.2) présente les profils de pression et de saturation obtenus pour $L=8,06 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ et $G=0,61 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ à un temps de 8 s. La saturation initiale a été fixée à 0,15.

L'écoulement est alors en cours d'établissement, comme l'indique la présence du front de propagation de la zone riche en liquide. On peut également constater l'existence d'une discontinuité dans la pente de la pression P_G , qui correspond à la présence du front. La propagation de ces discontinuités est gérée sans problème particulier par le code de calcul.

Modèle bidimensionnel

Si l'on utilise une porosité uniforme, les résultats sont identiques à ceux du modèle 1D. La saturation et la pression sont alors uniformes sur un rayon.

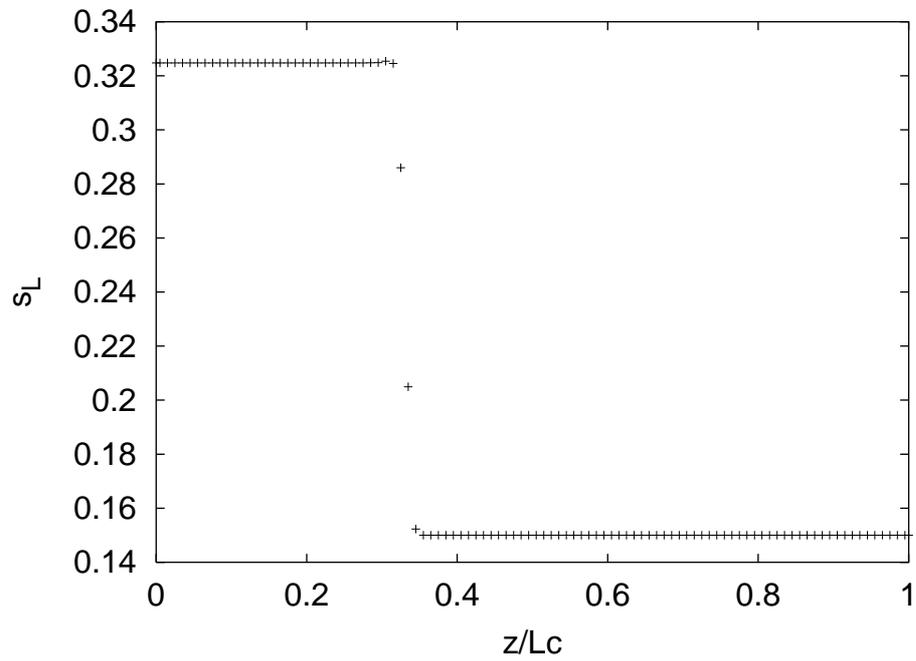
La répartition radiale de la saturation calculée en utilisant le profil de porosité est présentée sur la figure (3.3).

On constate que la saturation atteint des valeurs très faibles (de l'ordre de 10^{-3}) à la paroi qui correspondent à des valeurs anormalement élevées de la vitesse du gaz (4 ms^{-1}). Bien qu'en accord avec les résultats des simulations de Jiang et coll. (1999), ce résultat est en contradiction avec les mesures effectuées à la paroi du réacteur (Latifi et coll., 1992), qui montrent que la paroi est en général mouillée. Un tel comportement nous paraît provenir du fait que les relations utilisées pour établir le modèle (lois de Darcy étendues, rétention capillaire) ne sont plus valables lorsque la porosité devient importante (comme c'est le cas près de la paroi).

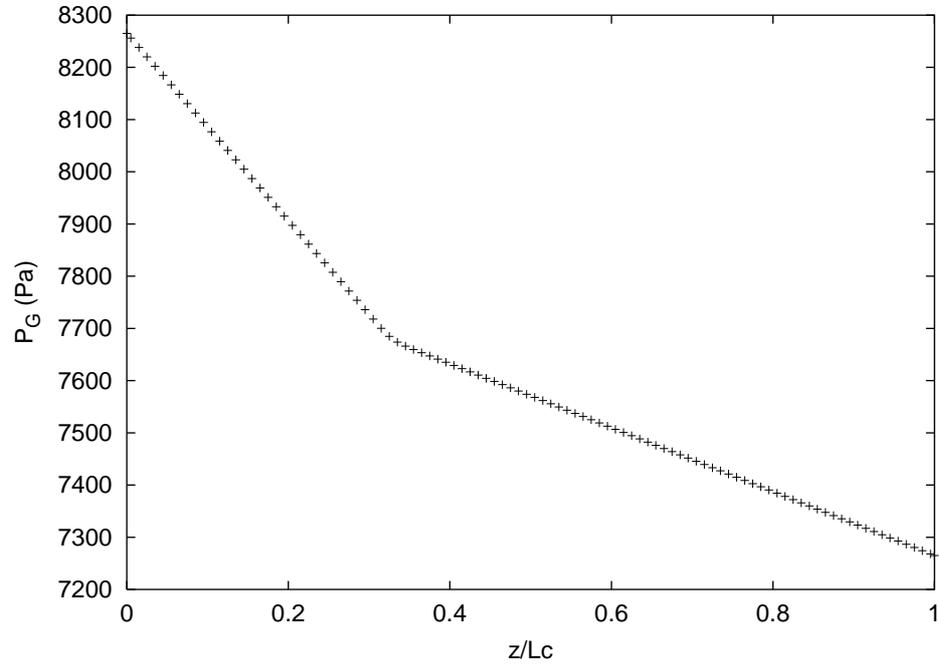
3.5.2 Comparaison aux données expérimentales

Nous avons pu valider en partie le code de calcul en comparant les pertes de charge globales calculées à l'aide du code monodimensionnel à celles mesurées dans les mêmes conditions opératoires – figure (3.4).

Bien que la tendance soit respectée, le modèle sous estime systématiquement la perte de charge d'environ 40%. Il n'a malheureusement pas été possible de faire suffisamment de



(a) Saturation liquide



(b) Pression gaz

FIG. 3.2 – Propagation du front de saturation

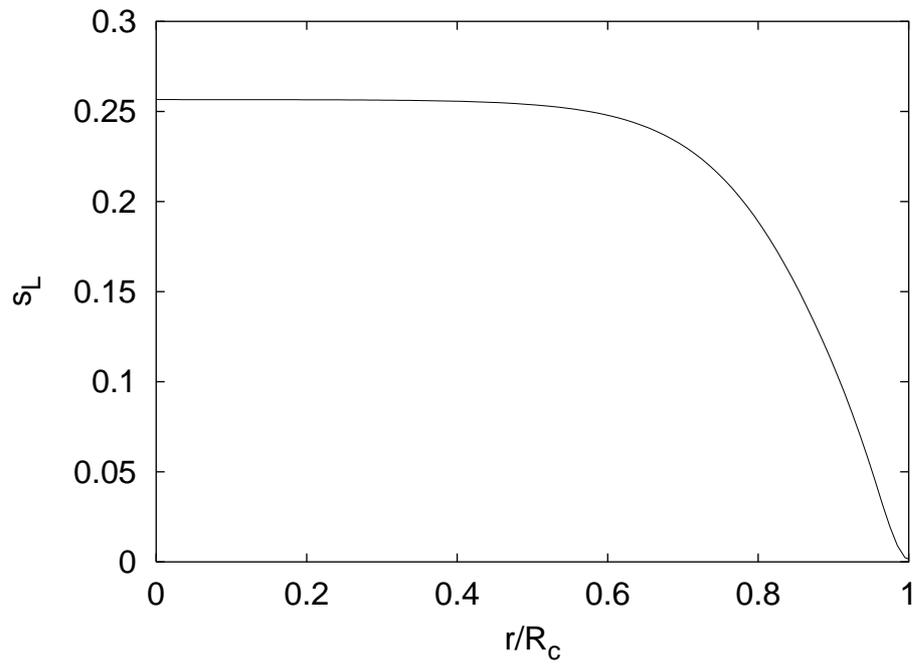


FIG. 3.3 – Profil radial de saturation - Porosité de Vortmeyer et Schuster (1983) – $L = 8,1 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ – $G = 0,14 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

calculs pour présenter les mêmes résultats obtenus avec le modèle 2D, qui devrait fournir des estimations plus réalistes pour la perte de charge.

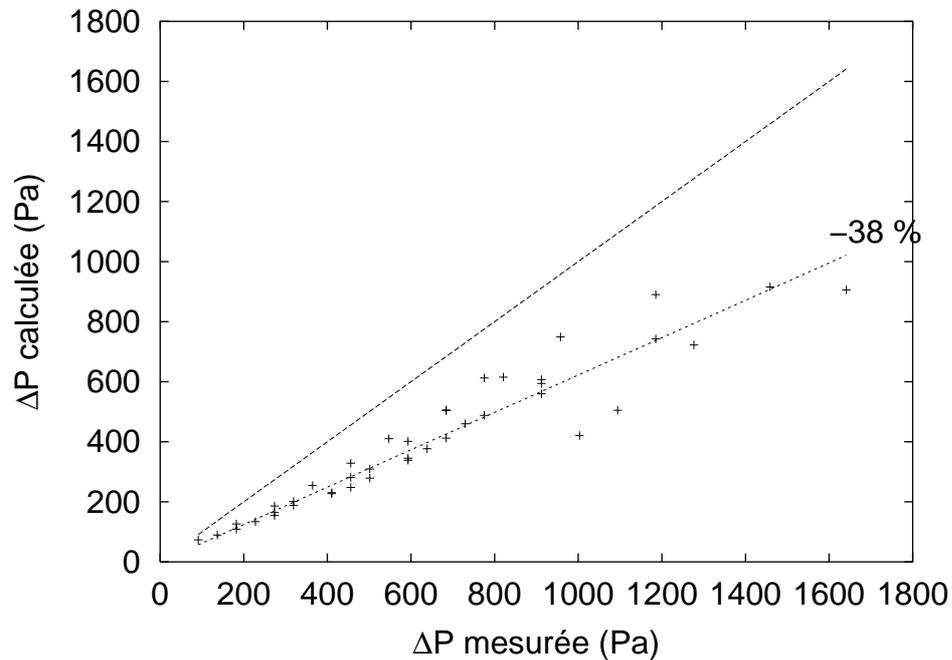


FIG. 3.4 – Comparaison des pertes de charges calculées et expérimentales

3.6 Conclusions

Un modèle numérique permettant le calcul de la répartition spatiale des saturations et des pressions a été proposé et résolu. Le problème de la gestion de la propagation du front de saturation a en particulier été solutionné grâce à l'utilisation de techniques numériques particulières. Si les résultats sont qualitativement satisfaisants, il apparaît que certaines améliorations sont nécessaires. En particulier dans le cas de la prise en compte d'un profil de porosité, l'écoulement à la paroi du réacteur n'est pas correctement représenté. Par ailleurs, la formulation du problème en variables de pression et saturation n'est possible que dans le cas d'un écoulement à faibles interactions. Une extension de la méthode aux régimes de fortes interactions n'est pas possible, et il faudra alors développer un schéma de résolution basé sur les équations de conservation « brutes ».

Deuxième partie

Résultats expérimentaux

Chapitre 4

Résultats expérimentaux en écoulement monophasique de liquide

La réalisation réside dans la pratique

BOUDDHA

4.1 Introduction

Ce chapitre présente les différentes mesures expérimentales réalisées dans le cas d'écoulements monophasiques de liquide à l'aide de microélectrodes insérées dans le sein du lit. Diverses méthodes de traitement des signaux ont été utilisées afin d'extraire les informations sur l'écoulement local et de caractériser les divers régimes d'écoulement. Nous nous sommes également intéressé au calcul du gradient de vitesse par un modèle de renouvellement de surface, qui pourrait permettre d'établir des analogies entre les transferts. En effet, les analogies couramment employées en Génie des Procédés (analogies de Chilton-Colburn) ne sont pas applicables dans le cas d'écoulements aussi complexes que ceux rencontrés en milieu poreux (Naderifar, 1995).

Des essais de mesures de pression en paroi ont également été réalisés (voir chapitre 5), mais les fluctuations étaient trop faibles pour être exploitables.

4.2 Régimes d'écoulement en écoulement monophasique : étude bibliographique

Dybbbs et Edwards (1984) ont étudié le comportement de fluides en milieux poreux par des techniques de visualisation de l'écoulement. Ils ont conclu à l'existence de 4 régimes d'écoulement, qu'ils ont caractérisé par le nombre de Reynolds interstitiel Re_i .

- Régime de Darcy, pour $Re_i < 1$. L'écoulement est dominé par les forces visqueuses, et la distribution de vitesse est fonction de la géométrie locale du milieu poreux ;
- Régime inertiel, pour $1 < Re_i < 150$;
- Régime laminaire instationnaire pour $150 < Re_i < 300$;

- Régime d'écoulement chaotique pour $Re_i > 300$, analogue à un écoulement turbulent en conduite.

Latifi (1988) a analysé les signaux provenant de microélectrodes implantées à la paroi du réacteur. Il a constaté une augmentation brusque du taux de fluctuation des signaux avec le débit de liquide, suivie d'une diminution régulière. En analysant les spectres de puissance des signaux, il observe trois régimes hydrodynamiques particuliers :

- Pour $100 < Re_p < 170$, les structures énergétiques ont une taille supérieure à celle des interstices, et ne peuvent donc pas passer à travers ceux-ci. Ce régime est caractérisé par des spectres de puissance des signaux très raides ;
- Pour $170 < Re_p < 370$, la taille des structures permet leur passage à travers les interstices ; l'énergie qu'elles transportent est moindre et la gamme de fréquences s'élargit ;
- Pour $Re_p > 370$, on a l'apparition d'une zone inertielle caractérisant le transfert des grosses structures vers les plus petites ; ce régime peut être qualifié de turbulent.

Rode (1992) obtient une limite de $Re_p = 150$ pour l'apparition des fluctuations, avec un dispositif expérimental semblable à celui de Latifi. Elle a également déterminé les temps caractéristiques de l'écoulement, et en a déduit la taille des agrégats fluides. Elle corrèle l'apparition d'un régime de type turbulent avec celle de ces agrégats.

Cependant, ces deux études ont porté uniquement sur des mesures à la paroi du réacteur. Or, le comportement du fluide à la paroi peut être sensiblement différent de celui au centre du réacteur, ainsi qu'on pourra le constater après simulation de l'écoulement, au chapitre 2.

Enfin, Seguin (1997) a effectué des mesures pariétales et internes dans deux lits de particules sphériques de tailles différentes. Il a déterminé les débits correspondant à l'apparition de fluctuations mesurables, et a trouvé une différence systématique entre les mesures pariétales et celles internes au lit – écart d'environ 20 % – qu'il attribue à l'effet de paroi. Ses résultats sont en accord avec ceux des auteurs précédents pour ce qui est des mesures en paroi. Quant aux mesures internes, elles conduisent à un nombre de Reynolds de transition $Re_p = 113$. L'auteur propose également d'interpréter la stabilisation du taux de fluctuation de S comme le début de l'établissement de la turbulence. Il note que cette limite est assez variable suivant l'électrode considérée, et donne comme limite approximative $Re_p = 450$.

4.3 Résultats des mesures par microélectrodes internes

4.3.1 Généralités

Les mesures effectuées grâce aux microélectrodes implantées dans le garnissage ont permis de déterminer les transitions de régimes par simple analyse du taux de fluctuation. Elles donnent également accès à des temps caractéristiques de l'écoulement. L'utilisation conjointe de plusieurs électrodes associées dans un pore permet en outre de caractériser le comportement du fluide à l'intérieur de ce pore. Enfin, nous avons appliqué avec quelque succès un modèle de renouvellement de surface pour la prédiction du gradient pariétal de vitesse.

Pour chaque série de données, 120000 mesures ont été effectuées, à des fréquences d'acquisition voisines de 300 Hz. Cette fréquence a été choisie après l'analyse d'autres mesures effectuées à 600 Hz, qui ont montré que les hautes fréquences (supérieures à 100 Hz) n'étaient pas porteuses d'information.

La figure (4.1) présente des signaux typiques renvoyés par une microélectrode pour différents débits de liquide.

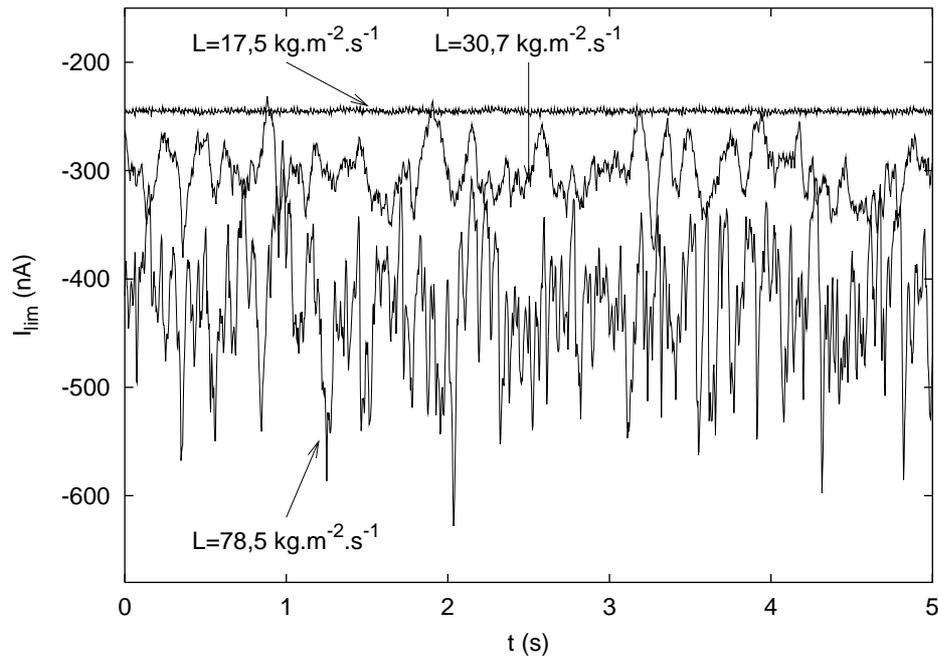


FIG. 4.1 – Signaux mesurés à l'aide de microélectrodes au sein du lit – Écoulement monophasique de liquide

4.3.2 Analyse statistique des signaux

On trouvera sur les figures (4.2) à (4.5) les différentes grandeurs statistiques des signaux renvoyés par les microélectrodes.

La valeur moyenne des courants limites (présentés sous la forme du coefficient de transfert moyen sur la figure (4.2) augmente régulièrement avec le débit de liquide, comme on pouvait s'y attendre. Il semble qu'il se produise une stabilisation aux forts débits ($L \simeq 50 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), mais des mesures complémentaires paraissent nécessaires pour confirmer cet effet. L'examen de l'écart type de ces signaux met en évidence l'existence de différents comportements du signal (apparition de fluctuations dont l'intensité se stabilise progressivement). Il est cependant plus correct, à notre avis, de travailler sur le taux de fluctuation. Les moments d'ordre 3 et 4 sont calculés avec une grande imprécision, en particulier dans le cas des faibles fluctuations. Par ailleurs, pour les écoulements présentant des fluctuations mesurables, ces deux grandeurs sont relativement proches des valeurs

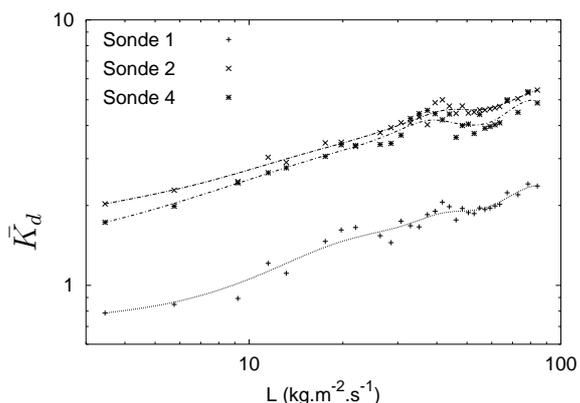
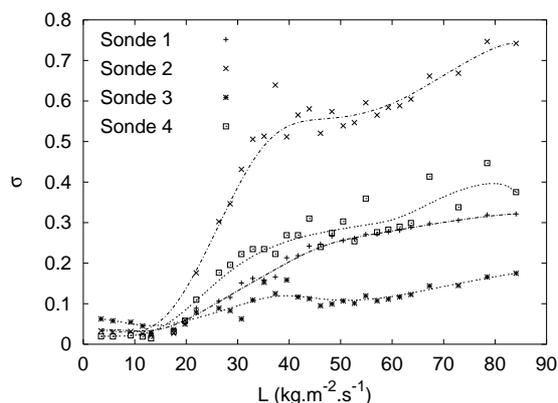
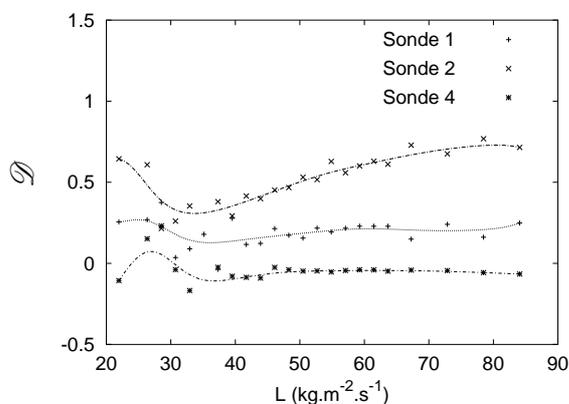
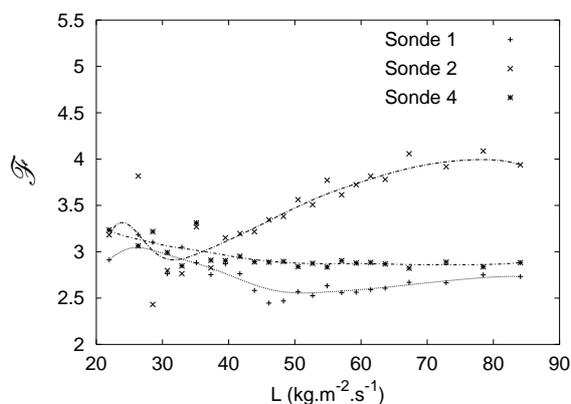


FIG. 4.2 – Moyenne des signaux

FIG. 4.3 – Ecart type des signaux σ FIG. 4.4 – Facteur de dissymétrie \mathcal{D} FIG. 4.5 – Facteur d'aplatissement \mathcal{F}

d'une distribution gaussienne (soit $\mathcal{D} = 0$ et $\mathcal{F} = 3$). On n'observe pas d'évolution particulière de \mathcal{D} et \mathcal{F} en fonction du débit de liquide, les variations semblant plus caractériser la sonde que l'écoulement.

On constate une augmentation du taux de fluctuation du courant limite (figure (4.6)) pour des débits de liquide supérieurs à $20 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, avec une forte augmentation dans la zone située entre 20 et $50 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ suivie d'une stabilisation, voire d'une légère diminution. La zone de stabilisation du taux de fluctuation semble correspondre à celle du coefficient de transfert moyen. En termes de nombre de Reynolds de particule, les limites des zones sont $Re_p = 110$ et $Re_p = 280$; ces valeurs sont cohérentes avec celles proposées dans la littérature pour les transitions de régime, en particulier avec les résultats de Seguin (1997) pour des sondes internes. On remarquera que ces limites sont obtenues sur toutes les sondes, y compris la sonde 1. La zone de stabilisation de Θ_I correspond également à celle de la moyenne des signaux.

Le taux de fluctuation Θ_I reste inférieur à 15%, quel que soit le débit considéré; ainsi, pour obtenir la valeur moyenne de S (voir (1.3.3)), la correction est au maximum de l'ordre de 7% si l'on considère une relation linéaire entre ces deux grandeurs. Sur la base de la relation (1.18), le taux de fluctuation du gradient de vitesse S atteindrait une valeur maximale d'environ 45%.

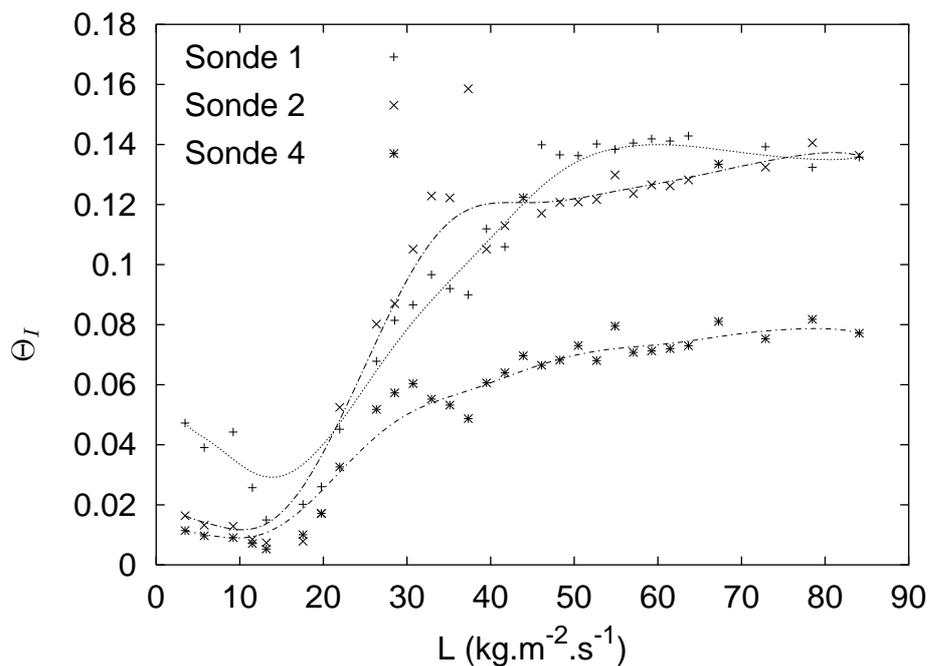


FIG. 4.6 – Taux de fluctuation

Le comportement de Θ_I ne correspond pas à celui obtenu à la paroi par Latifi et coll. (1989), pour qui le taux de fluctuation augmentait fortement avant de diminuer à partir de $Re_p \simeq 200$.

Les valeurs des moyennes des gradients de vitesse sont portés sur la figure (4.7).

Les valeurs moyennes obtenues pour les sondes 1 et 3 – figure (4.2) – sont très faibles. En ce qui concerne la sonde 3, son étalonnage a déjà mis en évidence un défaut, cette faible valeur de S pouvant en être une conséquence. Pour la sonde 1, sa position dans le sillage d'une bille nous paraît pouvoir expliquer les valeurs de S moins importantes que pour les sondes 2 et 4, bien exposées à l'écoulement.

Après calcul de ces valeurs moyennes, on constate que le critère de Ling – équation (1.9) – n'est respecté à tous les débits étudiés que pour les signaux provenant des sondes 2 et 4 ; il est donc difficile de travailler sur les valeurs des gradients de vitesse pour les sondes 1 et 3 aux faibles débits, car les hypothèses faites lors de l'établissement des relations conduisant de I à S ne sont plus toutes vérifiées.

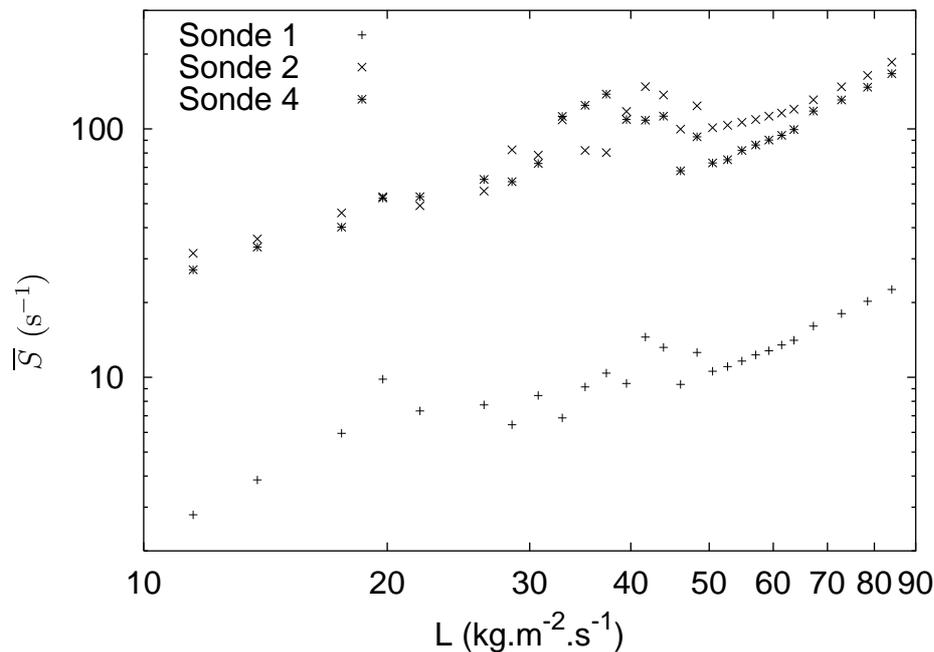


FIG. 4.7 – Gradients de vitesse moyens

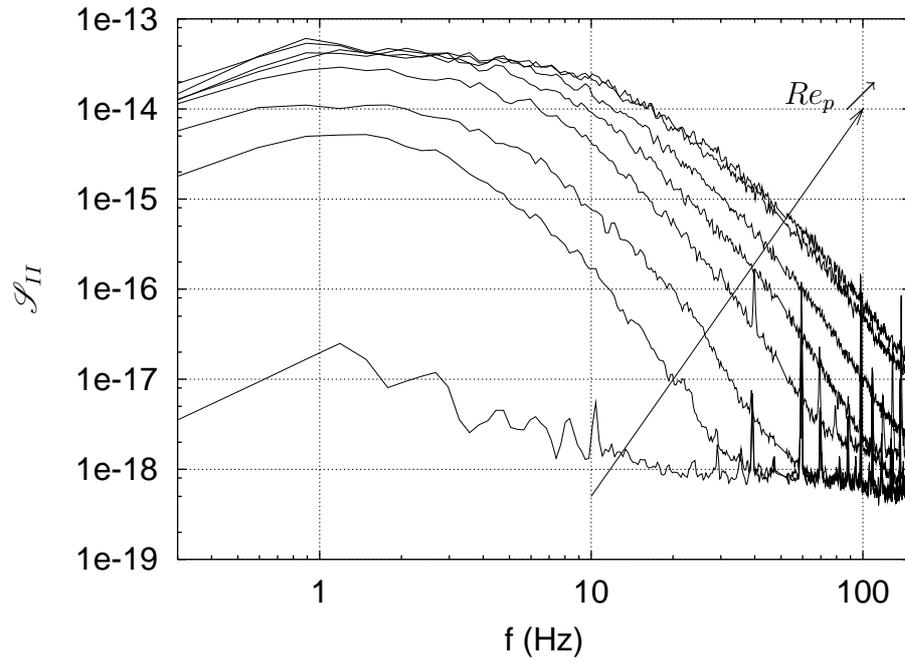
4.3.3 Spectres de puissance

Les spectres des signaux ne sont exploitables qu'à partir d'un débit d'environ $20 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, qui correspond à l'apparition des fluctuations.

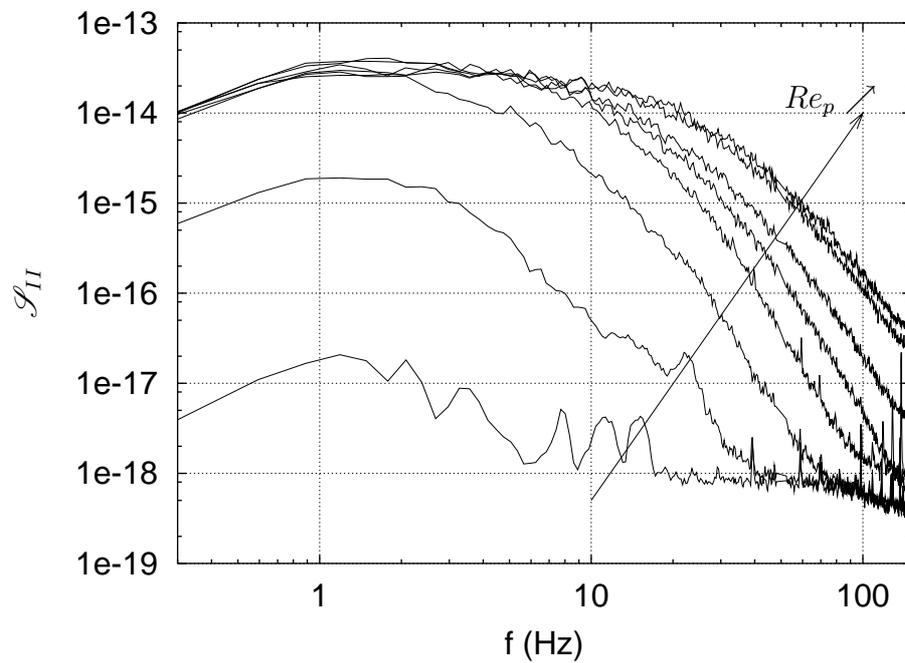
L'examen de l'évolution de ces spectres de signaux de courant \mathcal{S}_{II} avec le débit liquide – figure (4.8) – montre l'élargissement de la gamme des fréquences aux forts nombres de Reynolds, et la variation de la pente de décroissance des spectres aux hautes fréquences déjà observée par les autres auteurs. Cette pente reste par contre très inférieure à la valeur de $-5/3$ trouvée par Seguin (1997) et caractérisant la turbulence isotrope. Dans la mesure où nous n'avons utilisé aucune fonction de transfert, nous ne nous attendions pas à retrouver cette valeur (par ailleurs, la turbulence observée n'est pas nécessairement isotrope : les travaux de Seguin ont d'ailleurs montré une certaine disparité des résultats concernant la nature de la turbulence).

Si l'on considère les spectres des gradients de vitesse \mathcal{S}_{SS} obtenus par application des fonctions de transfert (1.23) à (1.24) aux spectres \mathcal{S}_{II} – figure (4.9) –, on constate que l'évolution en fonction du débit de liquide est similaire à celle de \mathcal{S}_{II} . On retrouve l'étalement du spectre vers les hautes fréquences (supérieures à 10 Hz), et la variation de la pente de décroissance du spectre correspondant aux fréquences les plus élevées. Cette pente n'est pas, là non plus, égale à $-5/3$.

Le décalage vers les hautes fréquences est notable à partir de $Re_p \simeq 150$, soit $L \simeq 20 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, correspondant approximativement à l'apparition de fluctuations. Cet élargissement est similaire à celui observé dans le cas d'écoulements turbulents, et traduit l'existence de diverses échelles de tourbillons. On peut également situer la fin de l'évolu-



(a) Sonde 1

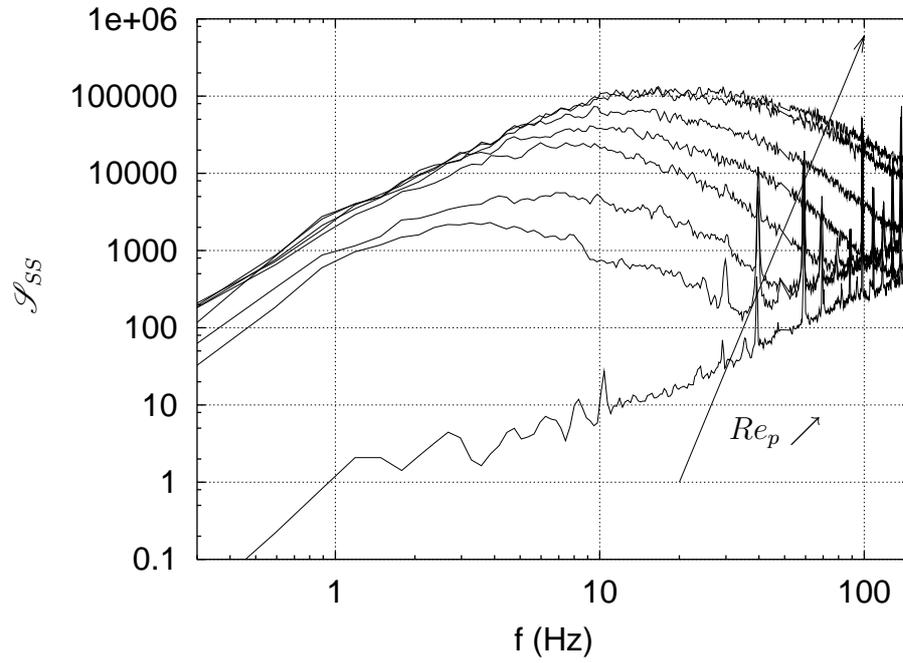


(b) Sonde 2

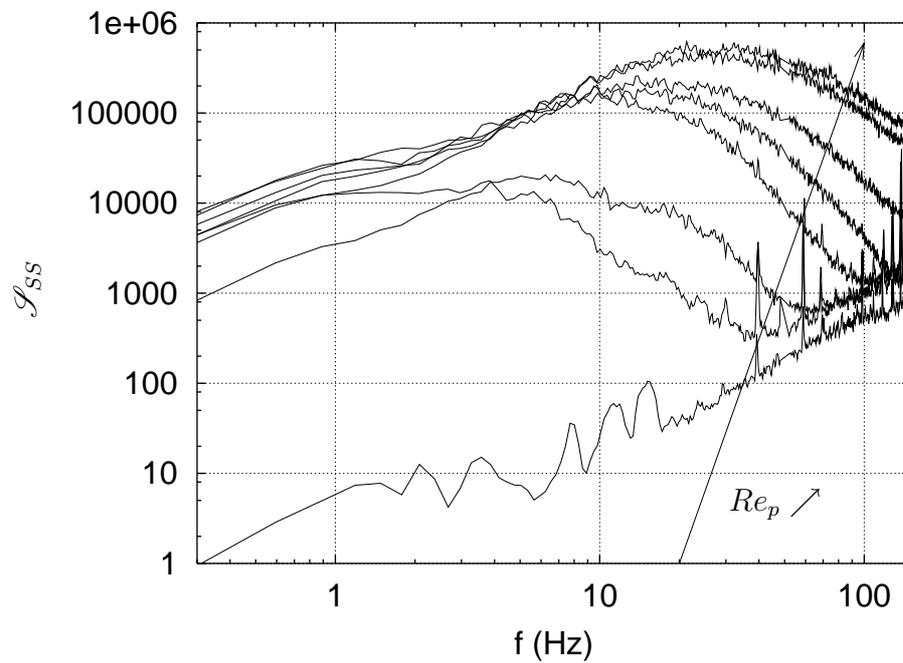
FIG. 4.8 – Spectres de puissance des signaux pour des nombres de Reynolds Re_p de 97, 122, 146, 195, 244, 341, 436, 467

tion des spectres vers les hautes fréquences à environ $Re_p = 400$ ($L \simeq 70 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$); on peut alors considérer qu'un écoulement de nature turbulente est établi. Cette limite est plus en accord avec les résultats de Seguin.

On peut expliquer l'étalement des spectres lorsque le débit augmente par l'augmentation de la dissipation d'énergie cinétique par des structures de petite taille. On retrouve la cascade énergétique caractéristique des écoulements turbulents, bien que la largeur de la bande de fréquence soit inférieure à celle communément observée dans le cas d'une turbulence de conduite. C'est pourquoi nous préférons rester prudent quant à la véritable nature de l'écoulement observé, et parler de comportement turbulent plutôt que de turbulence.



(a) Sonde 1



(b) Sonde 2

FIG. 4.9 – Spectres de puissance des gradients de vitesse pour des nombres de Reynolds Re_p de 97, 122, 146, 195, 244, 341, 436, 467

4.3.4 Autocorrélations des mesures

Quelques fonctions d'autocorrélation issues des spectres de puissance des signaux sont représentées sur la figure (4.10). Ces fonctions représentent la probabilité de prédiction du signal.

Ces fonctions n'ayant que peu d'intérêt en elles-mêmes, on s'intéresse aux temps de cohérence τ_c des signaux. Ce temps est défini comme le temps de la première annulation de la fonction d'autocorrélation. Physiquement, il correspond à la limite au delà de laquelle il est impossible de prédire le comportement du signal (*i.e.* on ne peut pas, connaissant le signal au temps t , prédire ce signal au temps $t + \tau_c$). On peut donc relier le temps de cohérence au temps de passage des structures de l'écoulement porteuses d'énergie.

On trouvera sur le graphe (4.11) les valeurs des temps de cohérence τ_c des signaux de courant pour chaque sonde en fonction du débit de liquide, ainsi que la courbe de régression $\tau_c s \sim \frac{1}{L}$.

Le temps intégral de cohérence T_c a ensuite été calculé ; ses valeurs sont portées sur la figure (4.12), avec la courbe de régression $T_c \sim \frac{1}{L}$. Il correspond à la valeur moyenne des temps de passage des structures porteuses d'énergie.

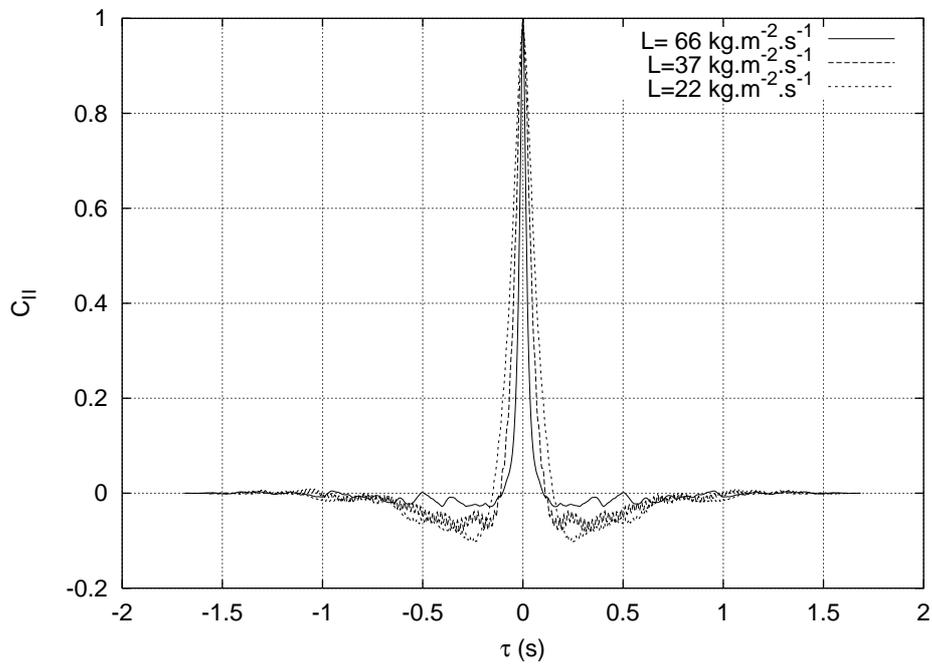
Pour des débits suffisamment importants ($Re_p > 300$), le produit $u_0 T_c$ est sensiblement constant. En admettant que la vitesse de passage dans le pore u_p est directement proportionnelle à la vitesse moyenne u_0 , ce produit est proportionnel à la dimension moyenne des structures porteuses d'énergie de grande taille. Si nous estimons la vitesse dans le pore à $u_p = \frac{u_0 \tau}{\varepsilon}$ (où τ est la tortuosité du milieu poreux, estimée à 1,5, la dimension des structures peut donc être calculée par $d_m = u_p T_c$. On trouvera les dimensions obtenues pour la sonde 2 à différents débits de liquide sur la figure (4.13). Les valeurs de la dimension maximale des structures d_M sont difficiles à obtenir (comme on le verra, la détermination de τ_c est parfois délicate), mais les dimensions moyennes semblent effectivement se stabiliser à des débits d'environ $50 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$.

Si nous utilisons les fonctions de corrélations des signaux, le calcul de la taille des agrégats aboutit à des valeurs nettement supérieures à celles attendues, en particulier la taille moyenne des structures est trouvée supérieure à celle des pores (4 mm pour une dimension de pore estimée à 2,22 mm).

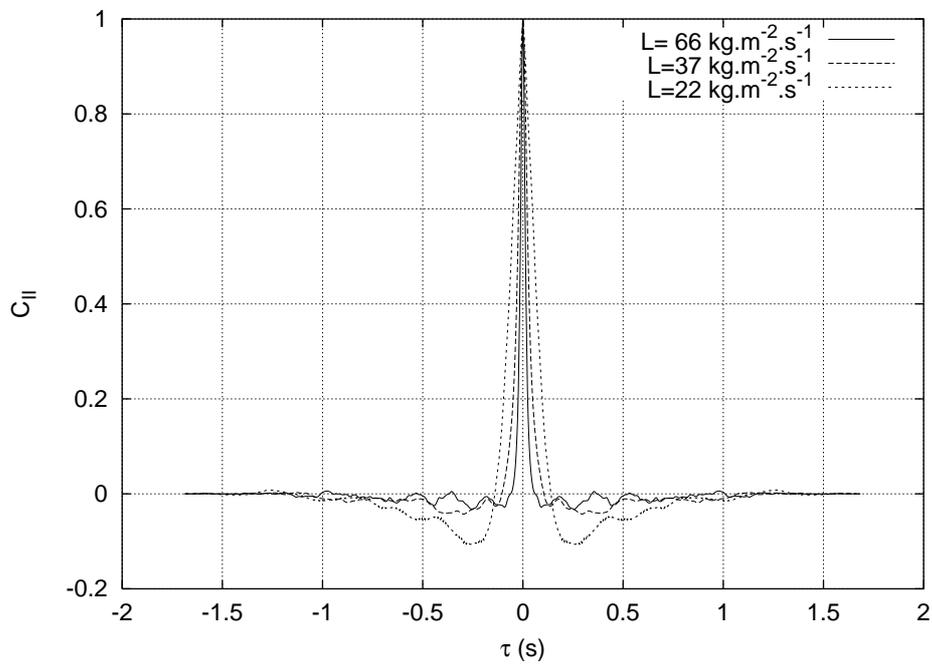
L'application des fonctions de transfert aux spectres, suivi du retour aux fonctions de corrélations, conduit à des temps caractéristiques τ'_c et T'_c nettement plus faibles, mais dont l'évolution en fonction du débit liquide est peu différente de celle de τ_c et T_c . Les dimensions maximales de structures obtenues ne se stabilisent cependant pas complètement. Pour des débits supérieurs à $50 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, la dimension maximale des structures obtenue $d'_M = \tau'_c u_p$ est comprise entre 1 et 1,3 mm. La dimension moyenne $d'_m = T'_c u_p$ reste par contre constante et vaut environ 0,5 mm.

Plusieurs points importants doivent être précisés quant au calcul des dimensions des structures :

- les fonctions de corrélation des gradients de vitesse utilisées pour le calcul sont le résultat d'une convolution par une fonction de transfert d'un résultat physique (la corrélation des signaux). La part de la fonction de transfert dans la détermination des temps caractéristiques est importante (fort écart entre τ_c et τ'_c), alors que nous ne sommes pas assurés de la pertinence de l'utilisation de ces fonctions.

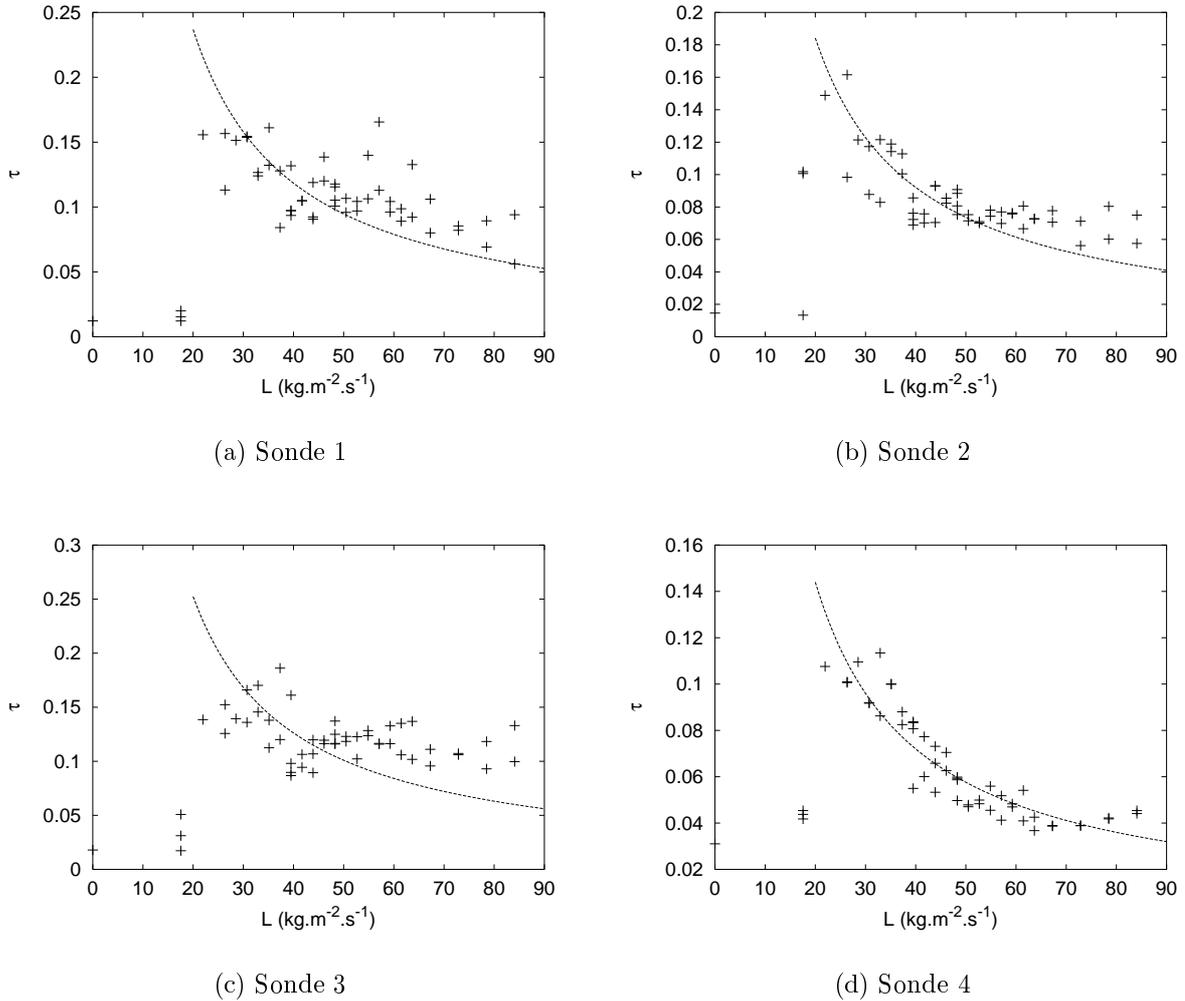


(a) Sonde 1



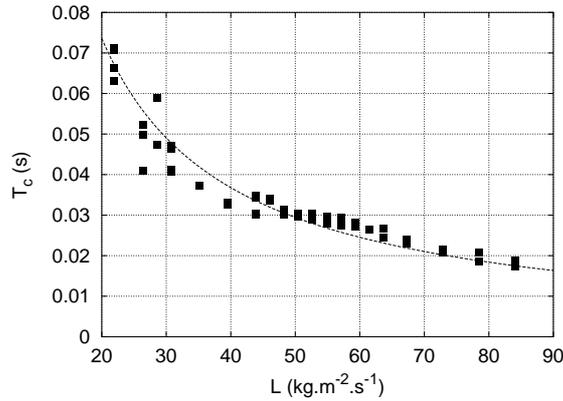
(b) Sonde 2

FIG. 4.10 – Fonctions d'autocorrélation des signaux

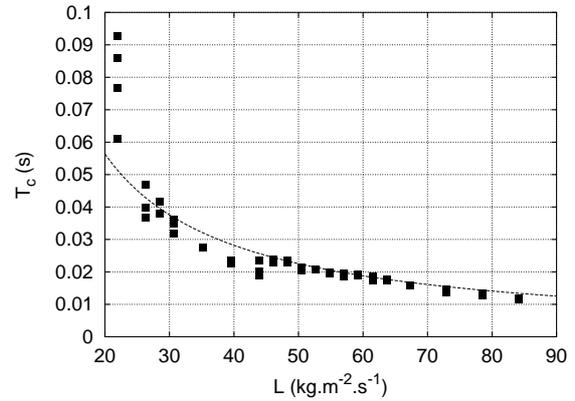
FIG. 4.11 – Temps de cohérence des signaux τ_c en fonction du débit de liquide L

- de plus, ces fonctions de transfert dépendent fortement de d_e , lequel est mesuré avec une précision de 10 % environ. L'exactitude des valeurs de la fonction de transfert est donc également discutable.
- la vitesse u_P utilisée n'est qu'une approximation basée sur un modèle. La dépendance linéaire entre u_P et u_0 n'est par exemple pas prouvée (en particulier dans le cas d'un système comme le nôtre où l'effet de paroi est important, voir chapitre 2).
- le calcul de T'_c par intégration de la fonction de corrélation est peu précis, par manque de points sur l'intervalle $[0, \tau'_c]$. Par ailleurs, faute de mieux, τ'_c et T'_c sont déterminés en utilisant des interpolations linéaires de C_{SS} , interpolations qui peuvent conduire à des erreurs importantes (Max, 1985, p.275).
- enfin, la détermination de τ_c peut être délicate quand la fonction de corrélation présente des oscillations marquées – figure (4.15).

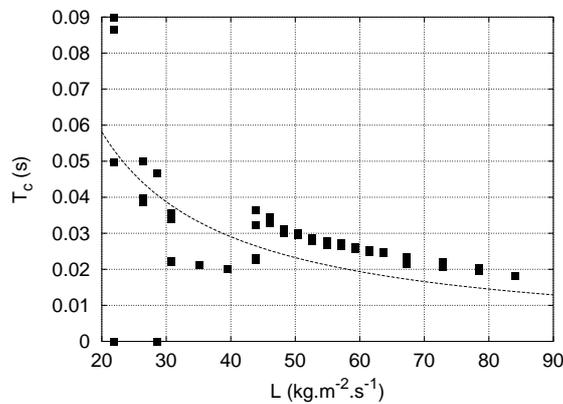
Ainsi, il ne faut pas considérer les tailles de tourbillons obtenues comme des valeurs exactes, mais plutôt comme des ordres de grandeur.



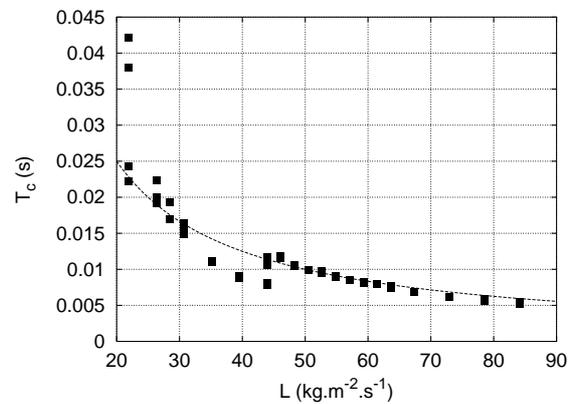
(a) Sonde 1



(b) Sonde 2



(c) Sonde 3



(d) Sonde 4

FIG. 4.12 – Temps de cohérence intégraux des signaux T_c en fonction du débit de liquide L

Les tailles de structures obtenues sont inférieures à celles trouvées par Rode ($d_M = 2,5$ mm– $d_m = 1,6$ mm) ou Seguin ($d_M = 2,1$ mm– $d_m = 0,9$ mm), bien que les résultats de Seguin soient plus proches des nôtres. Il faut toutefois rappeler que les mesures de Rode ont été effectuées à la paroi du réacteur, et ne sont donc pas significatives de l'écoulement au sein de celui-ci.

On a remarqué que la sonde 4 présente des temps T_c et τ_c très différents de ceux observés sur les autres sondes, bien que présentant la même variation (rapport constant d'environ 1/2 avec les valeurs des autres sondes). Il nous est difficile d'expliquer cela. Il est possible que cet écart provienne d'un problème de positionnement de la sonde 4, qui pourrait être exposée différemment à l'écoulement. Les temps fournis par cette sonde n'ont pas été pris en compte.

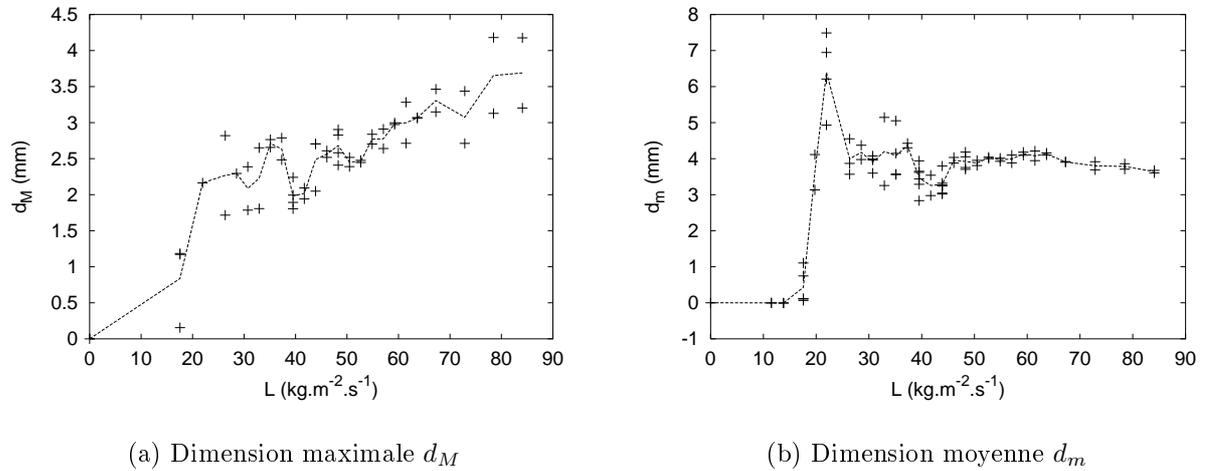


FIG. 4.13 – Dimensions caractéristiques calculées à partir des fonctions de corrélation des signaux – Sonde 2

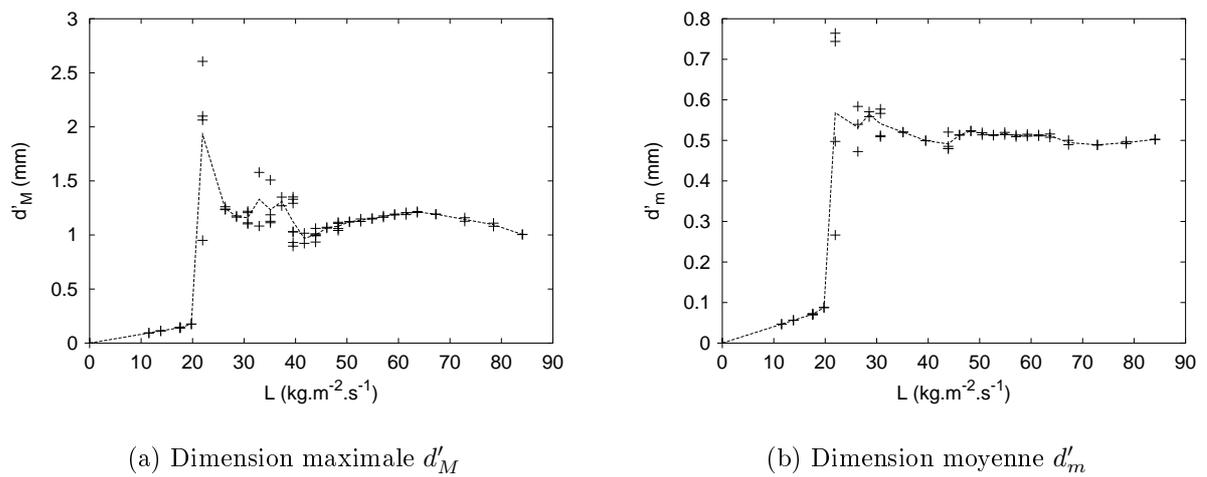
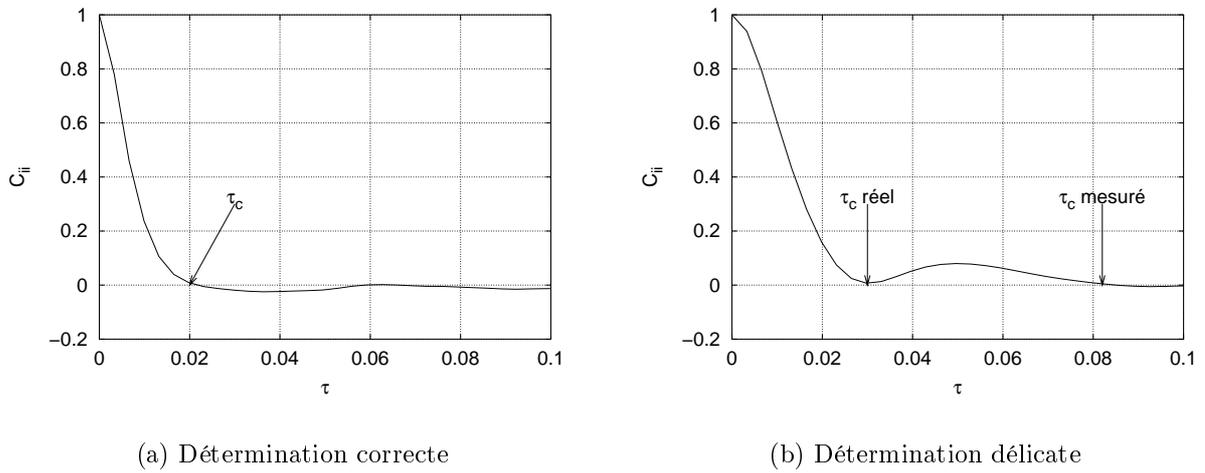


FIG. 4.14 – Dimensions caractéristiques des structures calculées à partir des fonctions de corrélation du gradient de vitesse – Sonde 2

FIG. 4.15 – Détail de deux fonctions de corrélation : détermination de τ_c

4.3.5 Intercorrélations des mesures

Les fonctions d'intercorrélations des signaux sont portées sur la figure (4.16) pour différents débits de liquide. On constate l'existence d'une forte corrélation relative à temps nul, c'est à dire que les phénomènes créateurs des fluctuations de courant sur les électrodes ont lieu simultanément sur les 4 électrodes. Le phénomène mesuré par les sondes intervient donc simultanément dans tout le pore ; ceci est en accord avec la dimension des structures déterminées en utilisant les temps de cohérence, qui sont supérieures à la distance entre les sondes. L'existence de cette corrélation à temps nul sur toute la plage de débits étudiée confirme que ces structures de grande taille continuent à exister, y compris après l'apparition du régime turbulent. Elles ne disparaissent qu'aux débits les plus élevés ($C_{II}(0) \rightarrow 0$).

Les figures (4.17) et (4.18) présentent le coefficient de corrélation à temps nul des couples de sondes (1-2) et (2-4).

Ce coefficient diminue globalement avec L , bien que présentant de fortes fluctuations dans la zone correspondant à l'augmentation du taux de fluctuation Θ_I .

Cette diminution de la corrélation spatiale peut s'interpréter comme la dislocation progressive des structures de grandes tailles au profit de structures plus petites. L'apport des grandes structures, quoique toujours présent, devient alors négligeable au regard de celui de ces petites structures. L'apparition de ces structures de petite taille (inférieure à la distance interélectrodes) peut être également à l'origine de l'apparition de coefficients de corrélations à $\tau = 0$ non maxima – figures (4.16(d)) et (4.16(f)) en particulier. On aurait donc l'apparition progressive d'un régime de type turbulent, ce qui semble confirmer les conclusions de l'analyse des spectres de puissance du §4.3.3.

Ces mesures permettent donc de confirmer l'existence d'un régime de type turbulent aux forts nombres de Reynolds de particule, du moins au niveau du pore de mesure. L'apparition de ce régime est progressive, et la turbulence n'est véritablement établie qu'aux débits étudiés les plus forts, soit à des nombres de Reynolds de particule de l'ordre de 400. En outre, ces résultats sont cohérents avec la taille maximale des structures d'_M obtenue au §4.3.4, qui est supérieure à la distance inter-sondes : ceci explique l'existence de la cohérence à temps nul. Le diamètre moyen d'_m est par contre inférieur à la distance entre les sondes, ce qui explique l'affaiblissement du coefficient de corrélation $C_{II}(0)$. On peut ainsi caractériser l'importance croissante de la turbulence dans le pore.

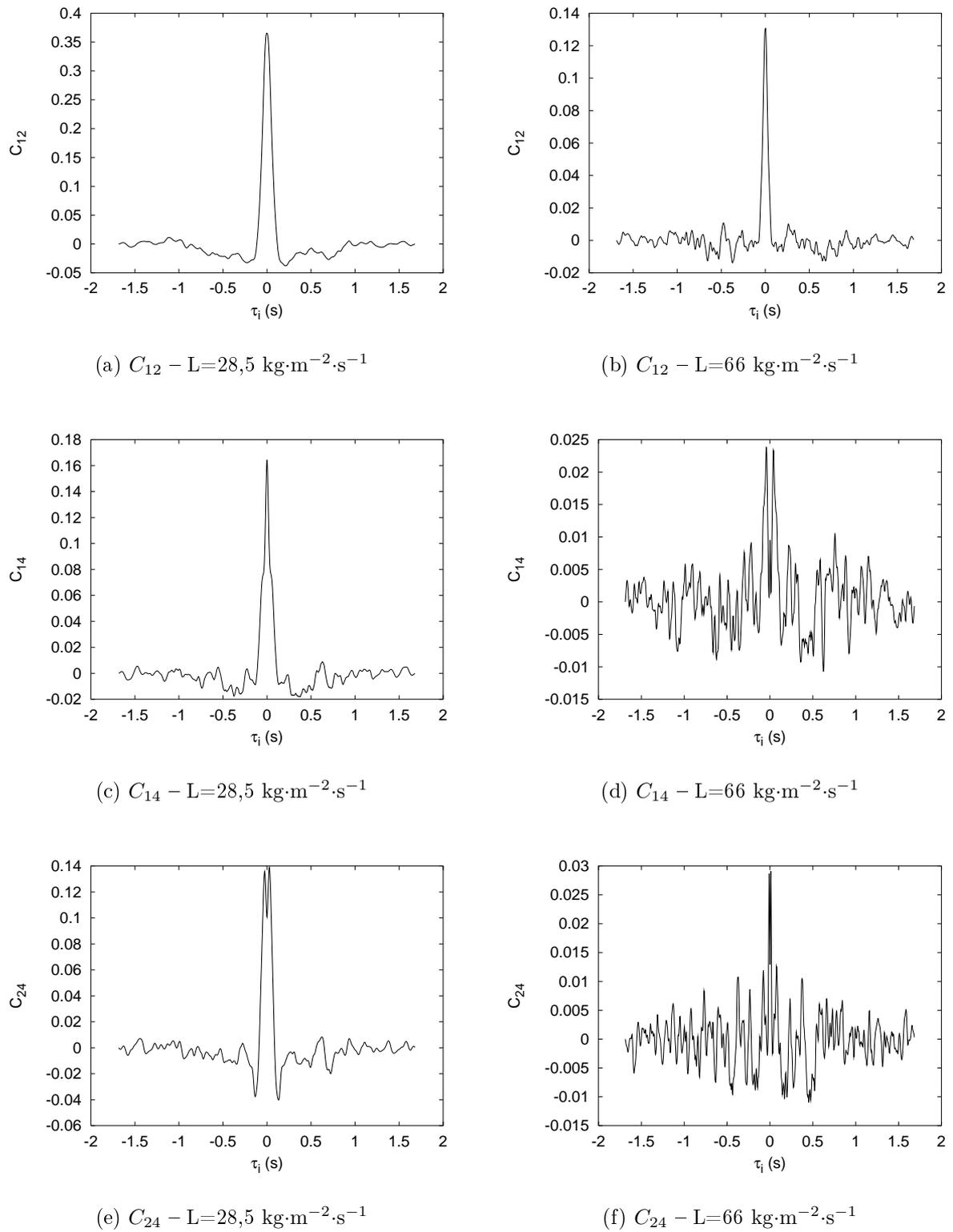


FIG. 4.16 – Fonctions d'intercorrélations des signaux de courant

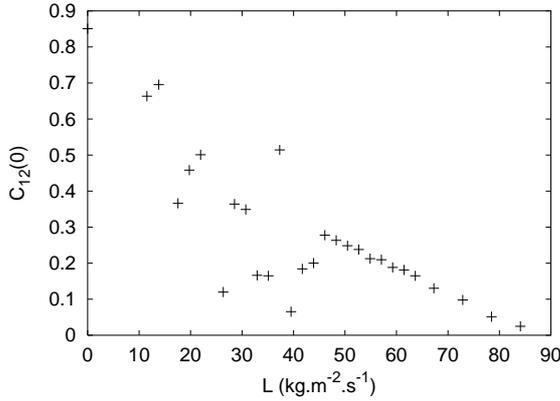


FIG. 4.17 – Coefficient de corrélation des sondes 1 et 2

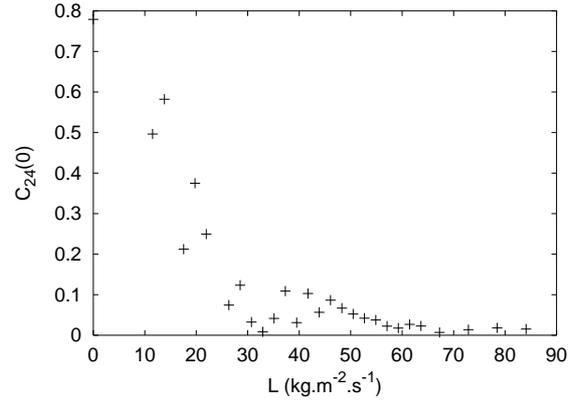


FIG. 4.18 – Coefficient de corrélation des sondes 2 et 4

4.3.6 Analyse fréquentielle : conclusions

L'analyse des spectres de puissance des signaux permet de mettre en évidence un comportement de type turbulent pour des débits de liquide supérieurs à $50 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ environ. Il est possible de déterminer les tailles des plus grandes structures, ainsi que des plus énergétiques. Les résultats obtenus sont confirmés par les intercorrélations des signaux. Par contre, il n'est pas possible de déterminer l'écoulement en lui-même. En particulier, on ignore si il existe une ou plusieurs structures tourbillonnaires dans le pore, ou si l'écoulement est strictement unidirectionnel. Il serait éventuellement possible de le déterminer en utilisant des électrodes capables de fournir les composantes de la vitesse, par exemple des électrodes tri-segmentées (voir par exemple la thèse de Baleras (1995), chap. II).

4.3.7 Interprétation du transfert de matière liquide-solide à l'aide de la méthode VITA

La méthode VITA a été appliquée aux signaux de courant reçus par chaque sonde, pour différents débits, permettant de calculer des temps caractéristiques du système. Par application d'un modèle de renouvellement de surface, nous avons recalculé les gradients de vitesse sur l'électrode, ce qui nous a permis de déterminer les paramètres de détection de la méthode VITA, en particulier le seuil de détection k .

Le choix de l'intervalle de calcul des paramètres statistiques locaux a dépend de deux facteurs : a doit être suffisamment petit pour ne pas détecter deux événements à la fois, et suffisamment grand pour qu'un calcul statistique sur a ait une signification. Nous avons décidé d'utiliser comme norme de a le temps intégral de cohérence. Ainsi, une valeur de a correspondant à $3T_c$ paraît satisfaisante. En effet, on peut vérifier que le temps de renouvellement t_0 reste toujours supérieur à $3T_c$, et ce pour différentes valeurs de a : l'intervalle a est donc assez petit pour éviter de détecter deux événements. Par ailleurs, $a = 3T_c$ correspond au minimum à 5 valeurs du signal. L'objectif est maintenant de vérifier

s'il existe une valeur de k permettant de déterminer des temps caractéristiques cohérents avec un modèle de renouvellement de surface.

La figure (4.19) présente un signal et la fonction de détection qui lui est associée.

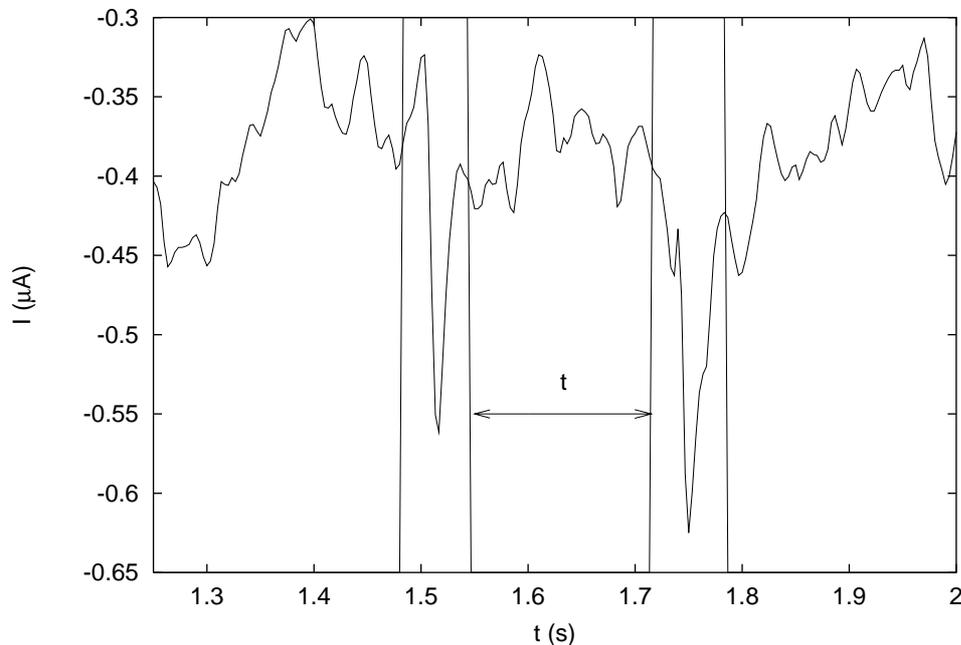


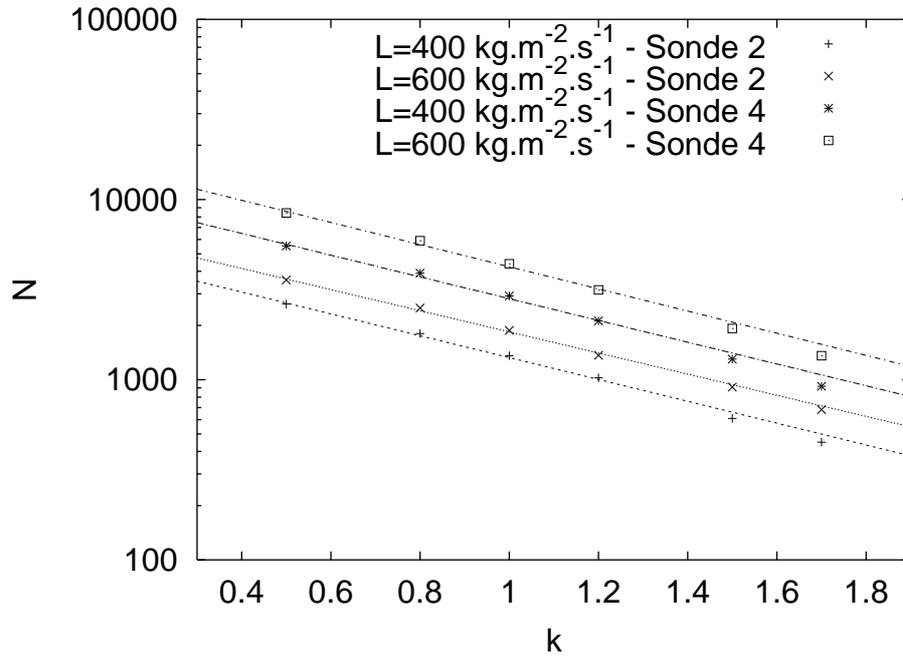
FIG. 4.19 – Exemple de fonction de détection - $L = 55 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

Le nombre d'évènements recensés est effectivement (Johansson et Alfredsson, 1982) une fonction exponentielle du seuil k , sauf dans le cas de seuils très faibles où des variations dues au bruit et aux fluctuations aléatoires sont détectées (figure 4.20). On notera que tous les évènements recensés ont été utilisés pour le calcul de t_0 , contrairement aux calculs de Fortuin et coll. (1992), où seuls les évènements correspondant à des accélérations ont été pris en compte.

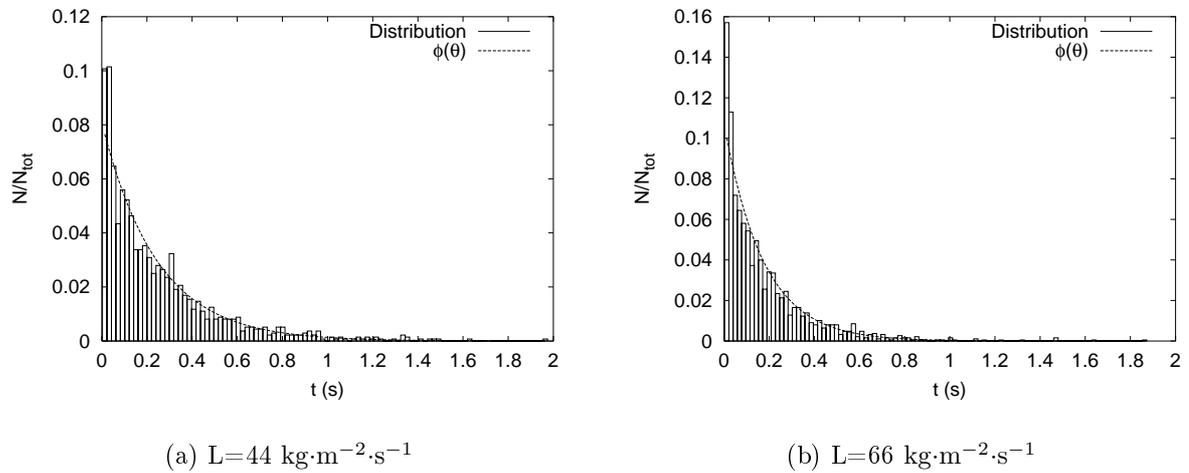
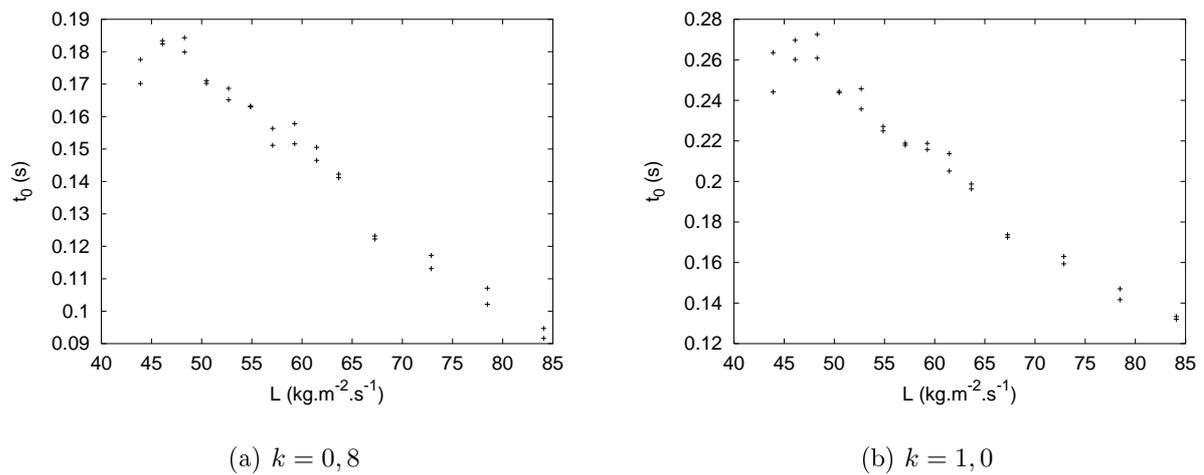
Les distributions de temps de contact pour deux signaux sont présentées sur les figures (4.21(a)) et (4.21(b)). On constate une bonne adéquation avec un modèle de distribution exponentiel ($\phi(\theta) = \theta \exp(-\theta/t_0)$) pour différentes valeurs de k , ce qui nous permet d'appliquer le modèle de renouvellement de surface. A ce stade, cependant, différentes valeurs de k peuvent être utilisées (entre 0,7 et 1,3) et aboutissent à des distributions bien représentées par le modèle exponentiel.

Le temps moyen de renouvellement t_0 est calculé pour chaque sonde aux différents débits étudiés. Les résultats sont portés sur la figure (4.22). Ces valeurs ne permettent cependant pas de choisir une valeur de k .

Connaissant le temps de renouvellement, on peut essayer de le relier au gradient de vitesse S obtenu expérimentalement par une relation du type $\frac{S}{L} = f(t_0)$ (forme de l'équation (1.45)). La figure (4.23) présente cette relation. La valeur de la pente théorique de S/L en fonction de t_0 devrait être de 0,5. La valeur de 0,44 obtenue est peu éloignée de cette pente théorique, et est donc satisfaisante.

FIG. 4.20 – Nombre d'évènements détectés selon le seuil de détection k

On a donc une relation correspondant aux équations du renouvellement de surface pour des temps t_0 suffisamment faibles, donc à des débits élevés. Ceci est également visible sur la figure (4.24) où l'on a porté S_{exp} en fonction de $\frac{u_0}{\sqrt{\nu t_0}}$, le temps t_0 étant obtenu pour $a = 3T_c$ et différentes valeurs de k . Cette comparaison nous permet de déterminer le seuil le plus adapté, qui est donc $k = 0,9$. La validité de ces paramètres demandera sans doute à être confirmée, mais l'intérêt de cette méthode est certain : elle fournit des temps de renouvellement qui pourront éventuellement être utilisés pour le calcul des coefficients de transferts de matière et de chaleur, au lieu des analogies usuelles (de type Chilton-Colburn), peu satisfaisantes en milieu poreux.

FIG. 4.21 – Distribution des âges expérimentale et modèle exponentiel : $k = 1$, $a = 3T_c$ FIG. 4.22 – Temps de renouvellement t_0 en fonction du débit liquide L pour différentes valeurs du seuil k

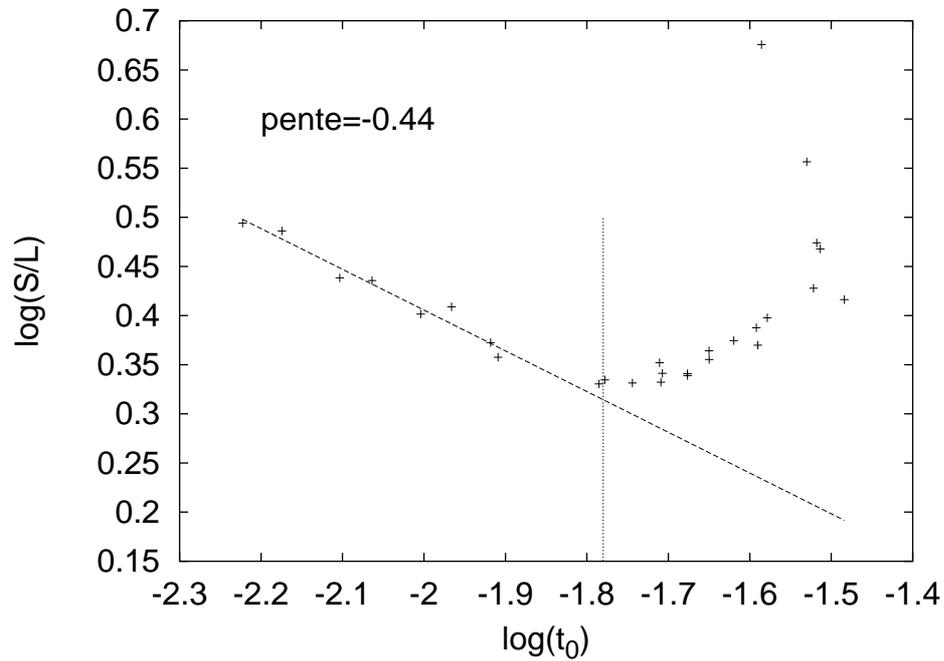
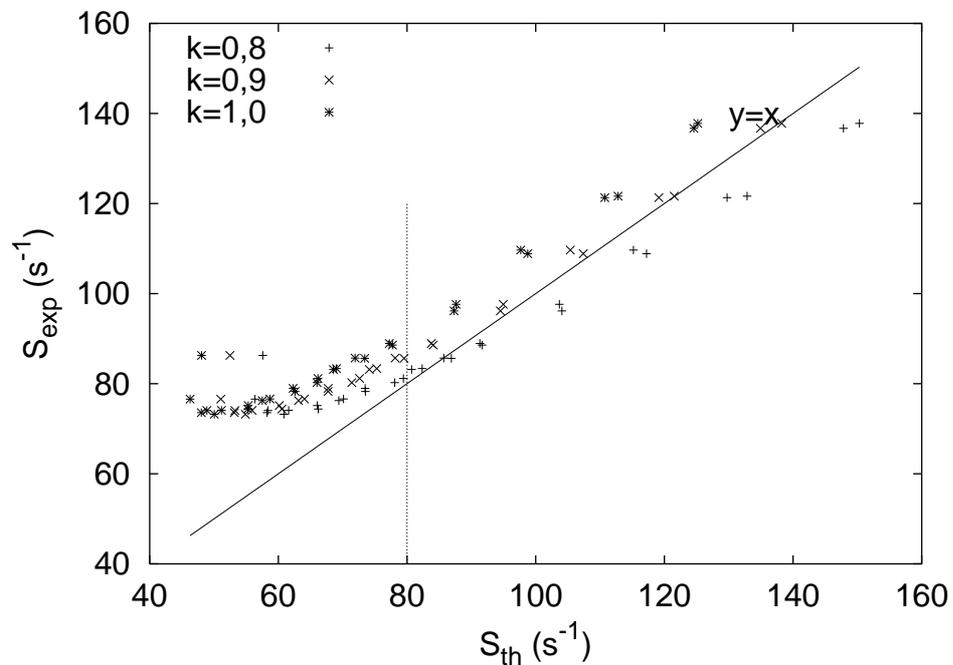


FIG. 4.23 – Variation du gradient de vitesse en fonction du temps de renouvellement

FIG. 4.24 – Comparaison des valeurs calculées de S à différents k aux valeurs expérimentales

4.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats des mesures effectuées en écoulement monophasique de liquide dans le milieu poreux. Nous avons pu caractériser l'écoulement local au niveau d'un pore du lit fixe par l'analyse spatio-temporelle de signaux issus de micro-électrodes placées au sein du lit. Les résultats obtenus pour chaque sonde prise individuellement suggèrent l'existence d'un régime de type turbulent au sein du pore, dont les conditions d'apparitions ont pu être déterminées. Par cette méthode, nous avons également pu déterminer les conditions d'apparitions de structures dans l'écoulement, dont la taille moyenne a été évaluée. La méthode utilisée ne permet par contre pas de déterminer totalement l'écoulement local. Il faudrait pour cela des sondes plus complexes capables de déterminer les composantes de la vitesse. On peut par exemple penser à des sondes trisegmentées du type de celles proposées par Baleras (1995), mais leur implantation dans le milieu poreux risque d'être extrêmement délicate.

L'utilisation de plusieurs microsondes électrochimiques à l'intérieur d'un même pore a par ailleurs permis de confirmer l'existence à fort débit liquide d'un régime de type turbulent, dont l'établissement est progressif. Ce résultat est d'autant plus satisfaisant qu'il ne fait pas intervenir de fonction de correction comme dans le cas de l'analyse des temps de cohérence. Il permet de plus de quantifier facilement l'effet de la turbulence.

Enfin, l'estimation des gradients de vitesse locaux a été réalisée à l'aide d'un modèle de renouvellement de surface. Les temps de renouvellement ont été calculés par la méthode VITA. La comparaison des valeurs calculées et mesurées a permis d'ajuster les paramètres de la méthode (en particulier le seuil de détection). Il est important de remarquer que la seule mesure du courant limite permet d'accéder à la fois à la valeur expérimentale et à la valeur théorique du gradient de vitesse. Il serait maintenant intéressant d'utiliser les résultats de cette méthode pour déterminer les coefficients de transfert de matière locaux, et de comparer ceux-ci à des résultats expérimentaux, que l'on peut obtenir par exemple avec une microélectrode insérée dans une paroi conductrice; on pourra alors éventuellement établir une analogie entre les transferts de quantité de mouvement et de matière, comme l'ont fait Fortuin et coll. (1992) pour un écoulement turbulent en conduite.

Chapitre 5

Résultats expérimentaux en écoulement biphasique

إِیْحِثْ عَلَی الْعِلْمِ مِنْ الْمَهْدِ إِلَى اللَّحْدِ

Recherche la science du berceau au tombeau

MAHOMET

5.1 Introduction

Ce chapitre présente les résultats expérimentaux concernant l'écoulement à co-courant vers le bas de gaz et de liquide dans un lit fixe. Des mesures locales de pression ont été effectuées et ont permis de caractériser l'écoulement gaz-liquide (transition de régimes, caractéristiques des pulsations). Ce type d'études présente un intérêt industriel certain, car le passage d'un régime de faible interaction à un régime de forte interaction augmente le coefficient d'échange liquide-solide (Ruether et coll., 1980). Biskis et Smith (1963) ont par ailleurs prouvé que la présence de pulsations (induites, en l'occurrence) pouvait augmenter le transfert gaz-liquide dans des proportions importantes (jusqu'à 80%).

Dans un deuxième temps, on a réalisé des mesures à l'aide des microélectrodes déjà utilisées en écoulement monophasique, afin d'étendre au sein du lit les mesures déjà réalisées à la paroi et de confirmer ou d'infirmer ces résultats. Nous verrons plus en détail ce qu'il en est au §(5.4)

5.2 Régimes d'écoulement et caractérisation de l'hydrodynamique : bibliographie

On distingue, en écoulement gaz-liquide vers le bas dans un lit fixe, deux grandes catégories d'écoulements : le régime à faibles interactions, où les deux phases s'écoulent l'une indépendamment de l'autre, et les régimes à fortes interactions où la présence d'une phase influe sur l'écoulement de l'autre.

On peut considérer deux régimes de fortes interactions distincts : le régime pulsé, où des zones riches en gaz alternent avec des zones riches en liquide, et le régime dispersé, où une phase liquide continue est traversée par une phase gazeuse sous forme de bulles (lesquelles coalescent en général, d'où l'appellation de régime à bulles déformées) ; lorsque le débit de gaz est très faible, en régime dispersé, les bulles ne coalescent pas et restent sphériques : on parle de régime à bulles.

D'autres régimes existent, par exemple le régime de brouillard (le liquide est présent sous forme de fines gouttelettes portées par le gaz) et le régime moussant (dans le cas de fluides fortement inhibiteurs de coalescence).

5.2.1 Transitions de régime

Charpentier et Favier (1975) ont établi une carte des points de transition de régime, pour différents réacteurs et fluides. Ils ont montré que le tracé de $\frac{L}{G\lambda\psi}$ en fonction de G/λ regroupait bien les différents résultats. Les paramètres ψ et λ permettent d'extrapoler le diagramme obtenu en écoulement air-eau à d'autres systèmes (non moussants), et sont définis par :

$$\lambda = \sqrt{\frac{\rho_L \rho_G}{\rho_{\text{eau}} \rho_{\text{air}}}} \quad \psi = \frac{\sigma_{\text{eau}}}{\sigma_L} \left[\frac{\mu_L}{\mu_{\text{eau}}} \left(\frac{\rho_{\text{eau}}}{\rho_L} \right)^2 \right]^{1/3} \quad (5.1)$$

Aux fortes pressions, Larachi (1991) propose de modifier les cartes d'écoulement de Charpentier et Favier en faisant intervenir un paramètre $\Phi = 4,76 + \frac{\rho_G}{2\rho^*}$ (où ρ^* est la masse volumique de l'air à 293,15 K et 0,1 MPa) et en modifiant le paramètre λ avec :

$$\lambda^* = \sqrt{\frac{\rho_G \rho_L}{\rho^* \rho_{\text{eau}}}}$$

Le diagramme d'écoulement devenant un tracé $\frac{L}{G}\lambda^*\psi\Phi$ vs G/λ

NG (1986) propose différents modèles rendant compte des interactions entre phases pour calculer les limites des transitions de régime. D'après Larachi (1991), ces modèles ne sont valables que pour des écoulement air-eau.

Grosser et coll. (1988) ont déterminé les conditions de transition ruisselant-pulsé en calculant la limite de stabilité des équations de conservation en régime permanent. Ils proposent comme condition de transition :

$$W_1 W_5^2 + 2W_3 W_4 W_5 + W_2^2 W_4 = 0 \quad (5.2)$$

avec

$$W_1 = \frac{\rho_G}{\varepsilon s_G} + \frac{\rho_L}{\varepsilon s_L} \quad (5.3)$$

$$W_2 = -\frac{1}{(\varepsilon s_L)^2} \frac{\partial F_L}{\partial u_L} - \frac{1}{(\varepsilon s_G)^2} \frac{\partial F_G}{\partial u_G} \quad (5.4)$$

$$W_3 = \frac{\rho_G u_G}{\varepsilon s_G} + \frac{\rho_L u_L}{\varepsilon s_L} \quad (5.5)$$

$$W_4 = \frac{\rho_G u_G^2}{\varepsilon s_G} + \frac{\rho_L u_L^2}{\varepsilon s_L} + \frac{\sigma_L}{\sqrt{\varepsilon K}} \frac{\partial \mathcal{J}}{\partial s_L} \quad (5.6)$$

$$W_5 = \frac{F_L}{(\varepsilon s_L)^2} + \frac{F_G}{(\varepsilon s_G)^2} - \frac{1}{\varepsilon^2 s_L} \frac{\partial F_L}{\partial s_L} - \frac{1}{\varepsilon^2 s_G} \frac{\partial F_G}{\partial s_G} + \frac{u_L}{(\varepsilon s_L)^2} \frac{\partial F_L}{\partial u_L} + \frac{u_G}{(\varepsilon s_G)^2} \frac{\partial F_G}{\partial u_G} \quad (5.7)$$

$$F_G = -\left(\frac{A\mu_G(1-\varepsilon)^2\varepsilon^{1,8}}{d_p\varepsilon^{2,8}s_L^{2,8}} + \frac{B\rho_G(1-\varepsilon)|u_G|}{s_L^{1,8}d_p} \right) u_G \quad (5.8)$$

$$F_L = -\left(\frac{1-s_L^0}{s_L-s_L^0} \right)^{2,9} \left(\frac{A\mu_L(1-\varepsilon)^2s_L^2}{\varepsilon d_p} + \frac{B\rho_L(1-\varepsilon)s_L^3|u_L|}{d_p} \right) u_L \quad (5.9)$$

où \mathcal{J} est la fonction de Leverett (1941), F_L et F_G sont les forces exercées par le milieu poreux sur les fluides (voir également le chapitre 3).

5.2.2 Propriétés hydrodynamiques des pulsations

Le phénomène de pulsation, observé pour des débits importants de gaz et de liquide, consiste en l'alternance de zones riches en liquide et de zones riches en gaz. Une pulsation correspond à une zone dont les sections passantes sont obstruées par le liquide. Le gaz exerce alors une pression suffisante pour mettre en mouvement le liquide. Il peut être intéressant de connaître la vitesse de passage de ces pulsations, ainsi que leur fréquence (en particulier, la fréquence de pulsation est utilisée dans certains modèles de transfert de matière).

Blok et Drinkenburg (1982) ont utilisé une technique conductimétrique pour mesurer les propriétés des pulsations. Ils donnent pour la fréquence de pulsation f_p :

$$\frac{f_p}{\sqrt{d_p}} = A_p \frac{u_L u_G^{0,265}}{\varepsilon d_p^{0,5} s^{0,265}} - B_p \quad (5.10)$$

où s est la surface spécifique du garnissage, et A_p et B_p sont des constantes ; les auteurs donnent $A_p \simeq 1800$ et $B_p \simeq -58$ pour des anneaux Raschig.

Tsochatzidis et Karabelas (1995) proposent une estimation empirique de la fréquence des pulsations, sur la base de leurs résultats expérimentaux, par :

$$f_p = 2,13 + 2,87u_G \quad (5.11)$$

pour $u_L > 0,015\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $0,07\text{ m}\cdot\text{s}^{-1} < u_G < 0,33\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Ils proposent, avec prudence, une relation plus globale :

$$\frac{f_p l_0}{u_{i,G}} = 0,629 \left(\frac{Re_{i,G}}{Re_{i,L}} \right)^{0,57} \quad (5.12)$$

avec $l_0 = 0,3$ m.

Ces mêmes auteurs fournissent également une relation pour la vitesse de passage des pulsations :

$$V_p = \frac{1,03u_{i,G}^{0,79}}{1 + 0,76u_{i,G}^{1,27}} (1 + 25,4u_L) \quad (5.13)$$

pour $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1} \leq u_{i,G} \leq 1,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $0,011 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1} \leq u_L \leq 0,025 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Pour des vitesses superficielles de liquide inférieures à $0,011 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, les auteurs proposent de négliger l'influence du débit liquide sur la vitesse des pulsations.

Ils proposent également de regrouper les vitesses de passage par la relation :

$$\frac{V_p}{u_{i,G}} = 0,625 \left(\frac{Re_{i,L}}{Re_{i,G}} \right)^{0,61} \quad (5.14)$$

Récemment, Burghardt et coll. (1999) ont déterminé ces fréquences en combinant analyse d'image et technique conductimétrique. Ils donnent, pour de faibles vitesses intersticielles de liquide :

$$f_p = 23,579u_{i,L} - u_{i,L}^{\text{tr}} d_p^{-0,34375} \quad (5.15)$$

avec $u_{i,L}^{\text{tr}}$ la vitesse intersticielle de liquide correspondant à la transition de régime. Signalons tout de même que la variation de f_p en fonction de d_p n'a été étudiée que pour deux diamètres de particules différents. Nous retiendrons une relation de la forme $f_p = A_p(d_p) (u_{i,L} - u_{i,L}^{\text{tr}})$.

5.3 Mesures locales de pression : résultats expérimentaux

Les résultats que nous présenterons ici sont obtenus dans un système air/eau ; le montage est décrit en (1.2).

5.3.1 Transitions de régime et fréquence de pulsation

On trouvera sur la figure (5.1) le tracé de quelques densités spectrales de puissance \mathcal{S}_{PP} des signaux de pression pour les trois régimes d'écoulement. On s'est assuré *de visu* de la nature du régime.

On a ainsi théoriquement accès à la fréquence de passage des pulsations f_p (qui correspondrait à la fréquence dominante du signal), et *a minima* à leurs conditions d'apparition (donc, aux conditions opératoires de changement de régime), en particulier lors de la transition ruisselant/pulsé. Pour la transition entre les régimes dispersés et pulsés, la frontière est beaucoup moins nette. Ceci est particulièrement visible sur la figure (5.2), qui présente les maxima des densités spectrales de puissance des signaux pour différents débits de gaz, à L fixé. La figure (5.2(a)) correspond à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé, tandis que la figure (5.2(b)) montre l'évolution entre les régimes dispersés et pulsés.

On peut ainsi déterminer la transition du régime ruisselant au régime pulsé. Les résultats obtenus sont portés sur la figure (5.3). L'accord avec le modèle de Grosser et coll. (1988) est satisfaisant.

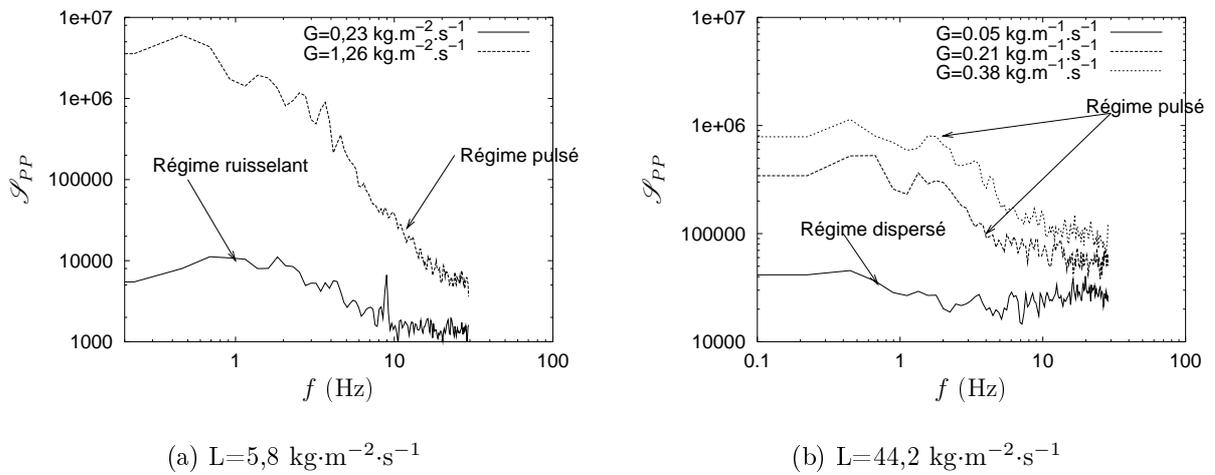


FIG. 5.1 – Densité spectrales de puissance \mathcal{S}_{PP} des signaux de pression en paroi

Cependant, et comme le font remarquer Burghardt et coll. (1999), la détermination de f_p à partir de \mathcal{S}_{PP} est délicate, en particulier à cause de l'étalement du spectre. Nous avons donc préféré calculer f_p directement à partir des signaux de pression. Un exemple de signal obtenu en écoulement pulsé est présenté sur la figure (5.4).

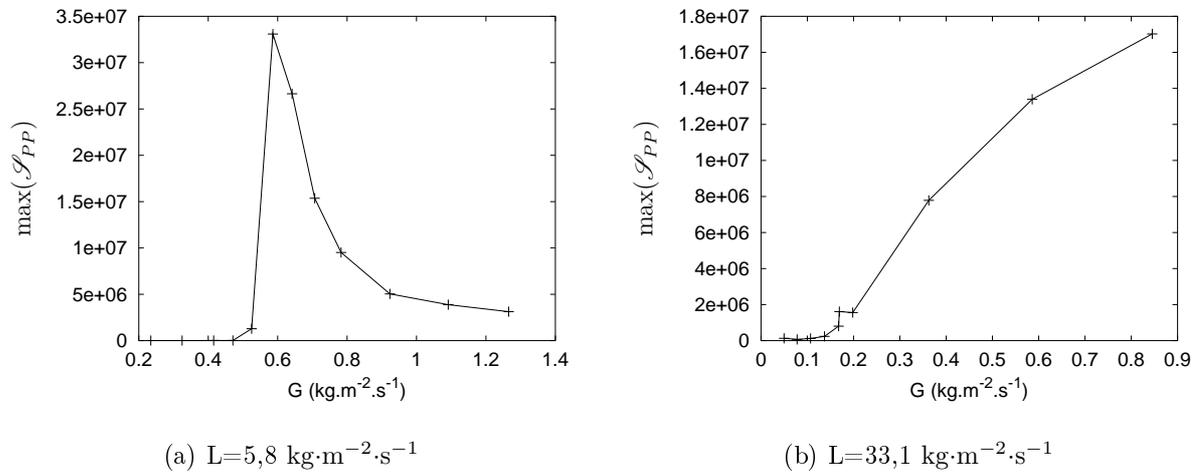


FIG. 5.2 – Maximum de densité spectrale de puissance des signaux de pression

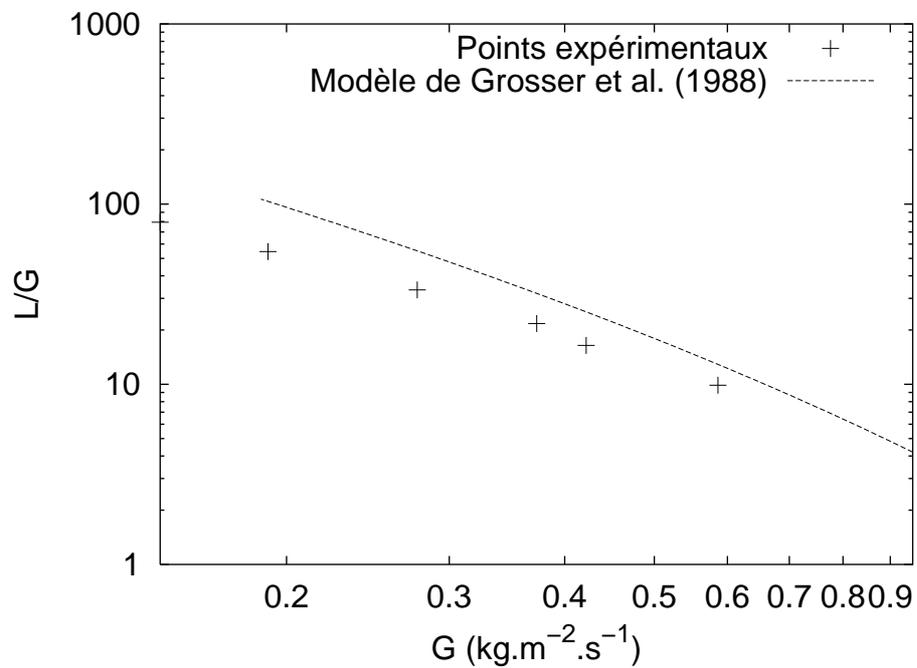


FIG. 5.3 – Transition de régime ruisselant-pulsé

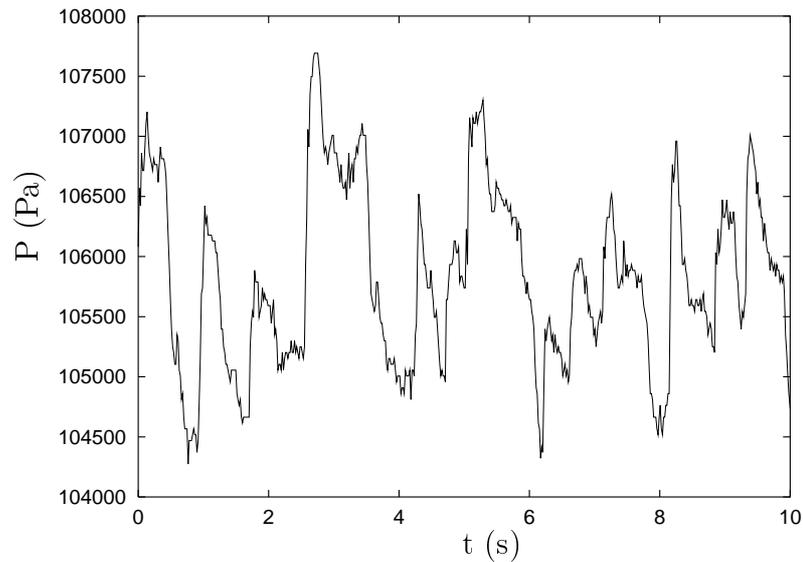


FIG. 5.4 – Exemple de signaux obtenus par les capteurs de pression en paroi

Le passage d'une pulsation est détectée par le changement de signe de l'écart à la moyenne de la pression ; il est alors facile de déterminer le temps t entre deux pulsations, l'inverse de la moyenne de ce temps correspondant à la fréquence de passage f_p . Afin de limiter la prise en compte du bruit, on ne tiendra pas compte dans le calcul de la moyenne des temps inférieurs à un seuil t_m fixé (équivalent grossier d'un filtre passe-bas). Nous avons également tenté d'utiliser la méthode VITA pour déterminer ces temps, mais elle n'a pas donné satisfaction (en particulier, on n'a pas pu trouver un jeu de paramètres acceptable).

On trouvera sur la figure (5.5) les fréquences de pulsation obtenues expérimentalement, pour deux débits liquides donnés. On a choisi un temps de seuil $t_m = 0,05$ s, correspondant à des fréquences de 20 Hz. On constate que la fréquence des pulsations augmente avec le débit de gaz. Ce résultat était attendu, puisque c'est le gaz qui fournit l'énergie nécessaire au déplacement de la pulsation.

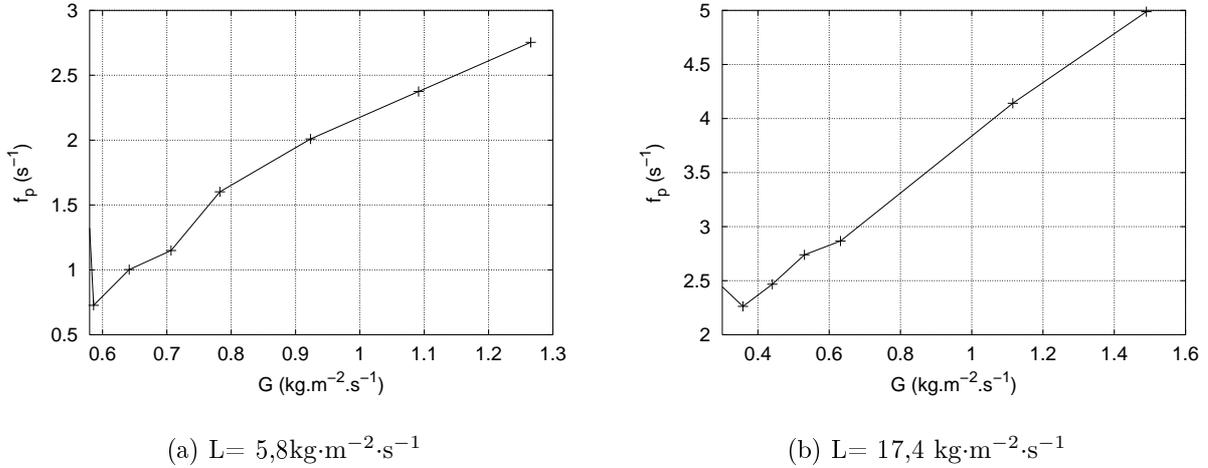


FIG. 5.5 – Fréquences de pulsation pour de faibles débits de liquide

Pour des débits liquides plus importants ($L > 37 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), on assiste à une inversion de la tendance, *i.e.* à une diminution de la fréquence de pulsation avec le débit de gaz – figure (5.6). On attribue ce comportement à la coalescence des bouchons de gaz. Après examen des différents résultats, on constate l'augmentation de f_p avec le débit liquide, du moins jusqu'à des débits de l'ordre de $37 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$.

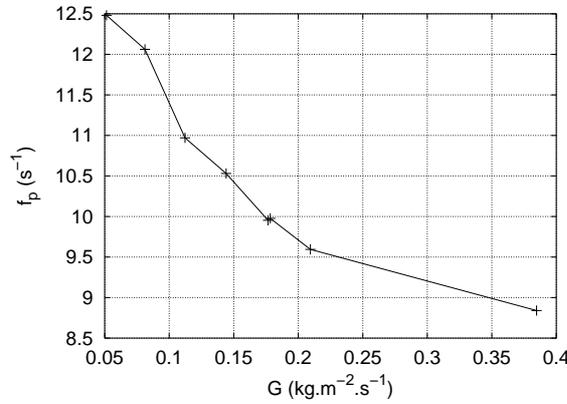


FIG. 5.6 – Fréquences de pulsation pour de grands débits de liquide

On peut essayer de regrouper les résultats en portant une fréquence normée $\frac{f_p l_0}{u_{i,G}}$ en fonction du rapport des nombres de Reynolds interstitiels des deux fluides (soit $\frac{Re_{i,L}}{Re_{i,G}}$). Le résultat est porté sur la figure (5.7) pour $l_0 = 0,3 \text{ m}$; on a alors :

$$\frac{f_p l_0}{u_{i,G}} = 22 \left(\frac{Re_{i,L}}{Re_{i,G}} \right)^{1,27} \quad (5.16)$$

La différence avec la relation établie par Tsochatzidis et Karabelas (1995) est importante, mais la comparaison est peu judicieuse vue la différence de domaines d'établissement

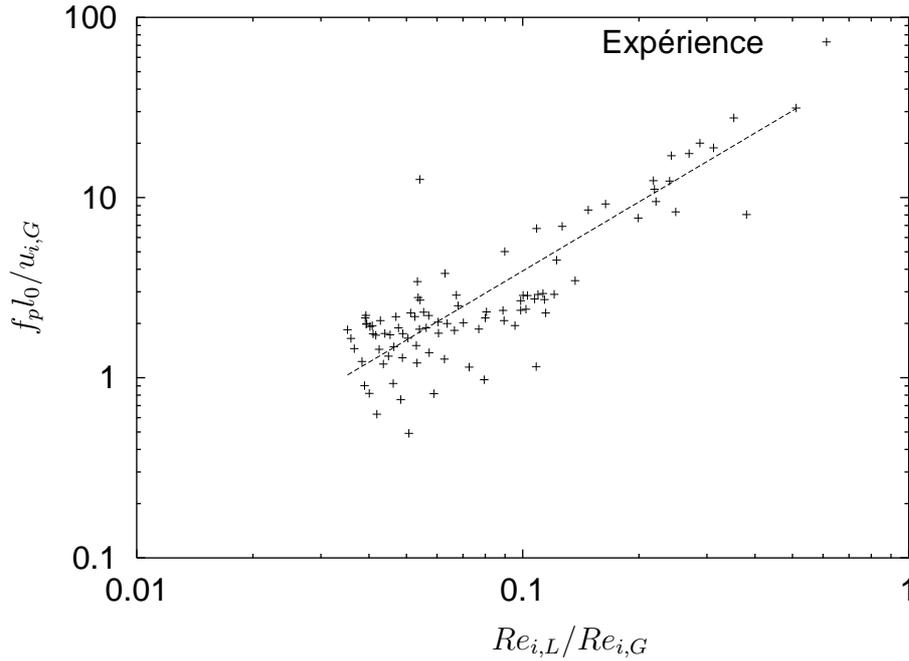


FIG. 5.7 – Relation entre la fréquence de pulsation normée et le rapport des nombres de Reynolds intersticiels

– le rapport des nombres de Reynolds intersticiels est compris entre 0,04 et 0,8 pour cette étude, et entre 0,5 et 6 pour celle de Tsochatzidis et Karabelas. Par ailleurs, cette relation a été établie en utilisant les saturations liquide s_L provenant d'une corrélation et non d'une mesure, et doit donc être considérée avec prudence.

Si on cherche à comparer les résultats obtenus avec ceux de Burghardt et coll. (1999), on ne retrouve pas la dépendance linéaire de f_p en fonction de $(u_{i,L} - u_{i,L}^{tr})$, même dans le cas des faibles vitesses de liquide. Il faut cependant rester critique vis à vis de nos résultats puisque la vitesse de transition de régime n'est pas connue avec une grande précision, et que, comme on l'a vu ci-dessus, la saturation liquide n'est pas mesurée.

Enfin, on observe parfois des comportements irréguliers mais permanents (par exemple, une pulsation de grande taille suivie peu après d'une autre de petite taille, ce comportement se répétant dans le temps). Il est alors difficile de parler de fréquence moyenne, la distribution des fréquences pouvant être bimodale. L'usage de méthodes temps-fréquence pourrait être intéressant dans le traitement de tels signaux. Ce comportement pourrait être lié à la longueur de la colonne; le fait qu'elle soit une grandeur finie contraindrait le système à adapter la longueur d'onde des pulsations. Ce point serait à vérifier par des mesures dans d'autres réacteurs de différente hauteurs.

5.3.2 Vitesse de passage des pulsations

Le calcul du temps d'intercorrélacion τ_i des signaux de pression en écoulement pulsé permet de déterminer la vitesse de passage des bouchons de gaz, la distance L_s inter-

sondes étant connue, par $V_p = \frac{L_s}{\tau_i}$. Nous présentons sur la figure (5.8) les vitesses de pulsation obtenues pour deux débits liquide, et correspondant à des transitions entre différents régimes. On a fixé $V_p = 0$ lorsque le temps d'intercorrélation τ_i était nul.

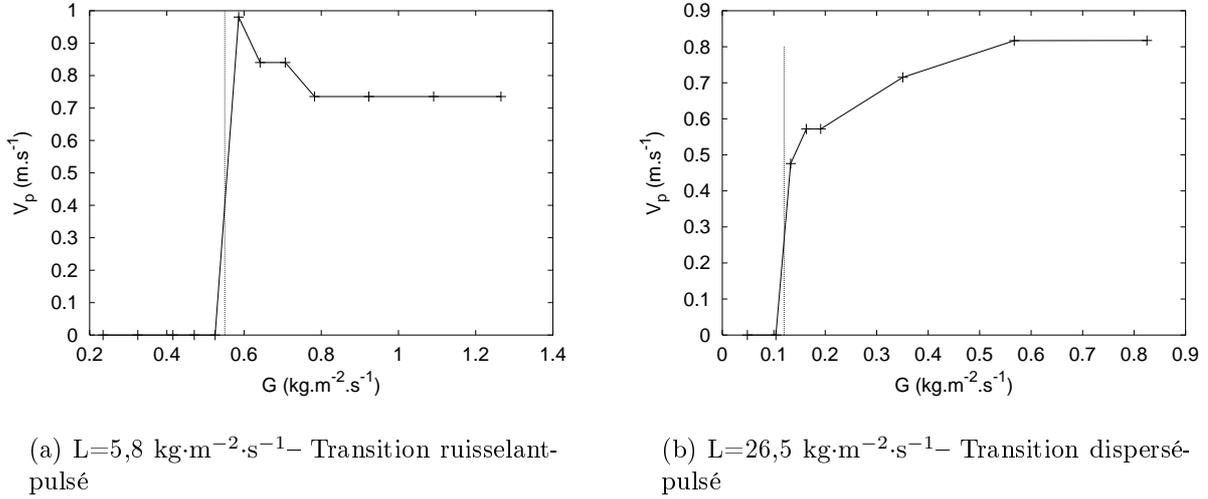


FIG. 5.8 – Vitesses des pulsations

On constate que la transition entre les régimes dispersés et pulsés est moins « brutale » qu'entre les régimes ruisselants et pulsés. Ceci est en accord avec les résultats obtenus pour les spectres de puissance (voir figure (5.1)).

Les variations de V_p en fonction du débit de gaz à débit liquide donné sont similaires pour tous les débits L considérés. Par ailleurs, on n'observe pas de grandes différences entre les vitesses de pulsations à fort débit de gaz.

En cherchant une relation du type de (5.14) (Tsochatzidis et Karabelas, 1995), on trouve :

$$\frac{V_p}{u_{i,G}} = 2,23 \left(\frac{Re_{i,L}}{Re_{i,G}} \right)^{0,472} \quad (5.17)$$

Cette relation ne regroupe pas aussi bien les données que dans le cas de Tsochatzidis et Karabelas – voir figure (5.9) ; ceci est probablement dû à la prise en compte, dans notre cas, de vitesses de pulsations proches de la transition, qui ont été écartées par les auteurs. Par contre, la relation (5.14) est utilisable et conduit à des résultats d'une précision honorable.

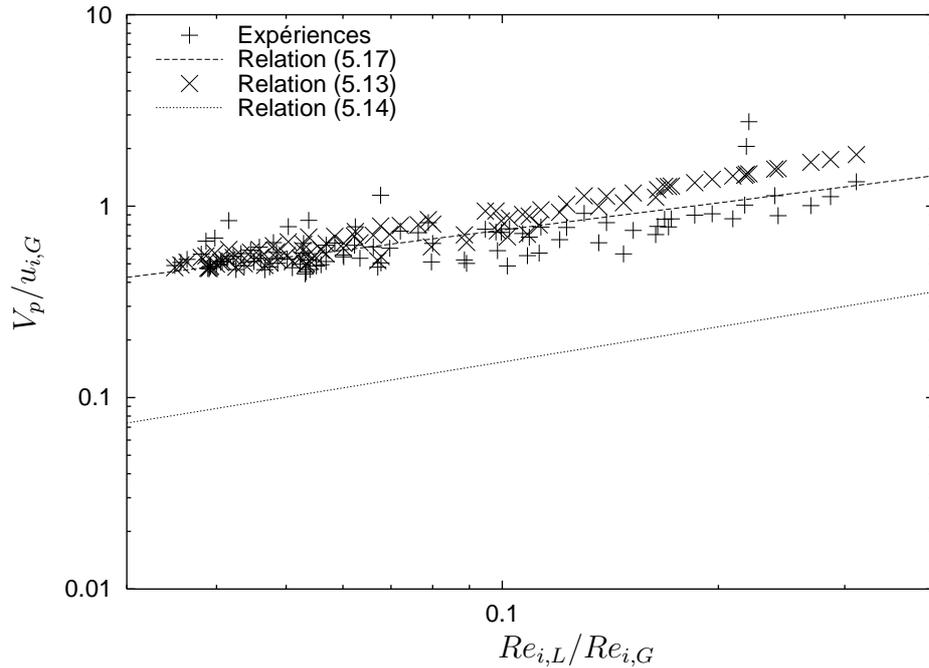


FIG. 5.9 – Relation entre la vitesse des pulsations normée et le rapport des nombres de Reynolds interstitiels du liquide et du gaz

5.4 Microélectrodes

5.4.1 Introduction

L'utilisation de micro-électrodes implantées dans le sein du lit a conduit à des résultats intéressants dans le cas de l'écoulement monophasique de liquide (chapitre 4). Nous avons donc essayé d'utiliser la même technique pour un écoulement gaz-liquide, suivant en cela les travaux de Rode (1992) et Naderifar (1995). Ces auteurs avaient utilisé des électrodes insérées dans la paroi du réacteur, et aboutit à certains résultats permettant de caractériser la nature de l'écoulement. L'examen local de l'écoulement est en effet nécessaire à la compréhension des phénomènes macroscopiques. Une approche de ce type avait été effectuée par Melli et coll. (1990), pour un milieu bidimensionnel ordonné, et a montré le très grand nombre de régimes microscopiques provoquant l'apparition de tel ou tel régime macroscopique. Il aurait été intéressant de l'étendre à un milieu réel. Cependant, comme nous allons le voir, il semble difficile d'utiliser nos mesures à cet effet.

5.4.2 Examen et remarques préliminaires

L'examen préliminaire des signaux « bruts » (figure (5.10)) permet de vérifier que l'intensité mesurée est rarement nulle. En général, le signal ne s'annule pas réellement, mais décroît fortement pour augmenter ensuite rapidement. Une telle décroissance est due à la rupture de la continuité du liquide entre la sonde et la contre-électrode ; elle indique

que le pore, ou tout au moins le voisinage de la sonde est occupé par la phase gazeuse. La fréquence de ces annulations (de l'ordre de 3 à 5 par minute) est faible et ne correspond pas à une fréquence de pulsation observée (bien que se produisant probablement au moment du passage d'une zone riche en gaz). Cette faible fréquence s'explique à notre avis par l'effet d'inhibition de coalescence du milieu qui conduit à des bulles de gaz de faible taille. Le pore n'est alors que rarement occupé intégralement par le gaz, comme il pourrait l'être dans le cas de bulles coalescentes. On ne retrouve donc pas les résultats de Melli et coll. (1990), qui observaient cette occupation intégrale du pore, en particulier en régime pulsé.

On peut être surpris de l'existence de fluctuations mesurables à des débits de liquide et de gaz aussi faibles que $L = 6,9 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ et $G = 0,055 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. Cependant, si l'on calcule la vitesse interstitielle du liquide $u_{i,L} = \frac{L}{\rho_L \varepsilon s_L}$, on a (avec $s_L \simeq 0,35$ estimé par la corrélation de Sáez et Carbonell) $u_{i,L} \simeq 0,05 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, ce qui correspondrait à un débit de liquide seul de $L \simeq 20 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. Dans la mesure où, en écoulement monophasique, les fluctuations observables apparaissent aux alentours de ce débit, il n'est finalement pas surprenant d'en mesurer en écoulement diphasique.

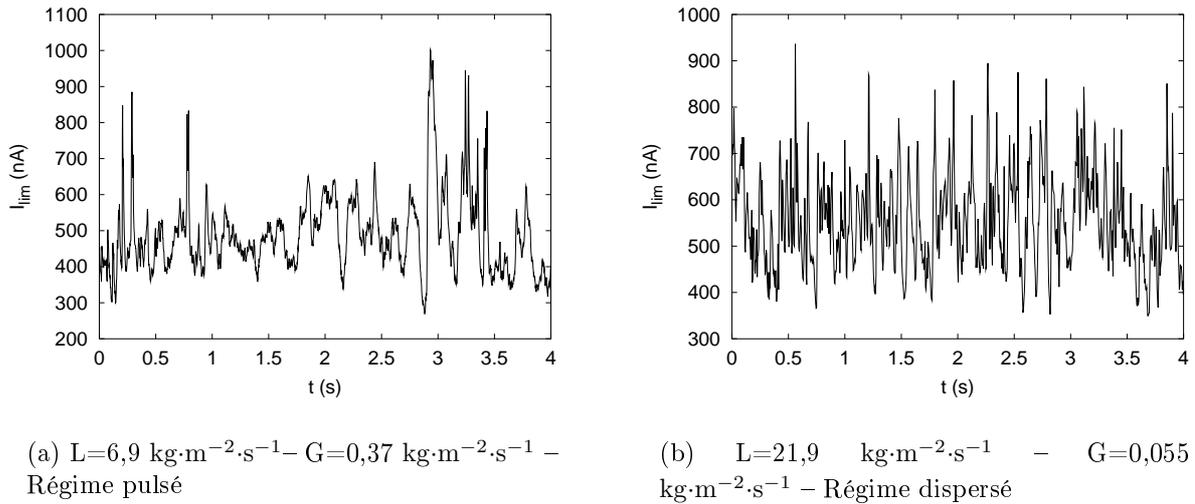
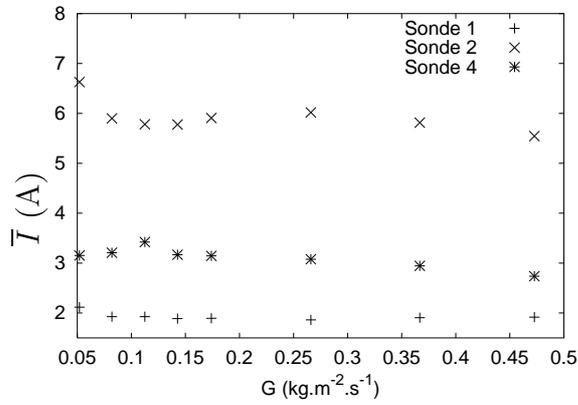


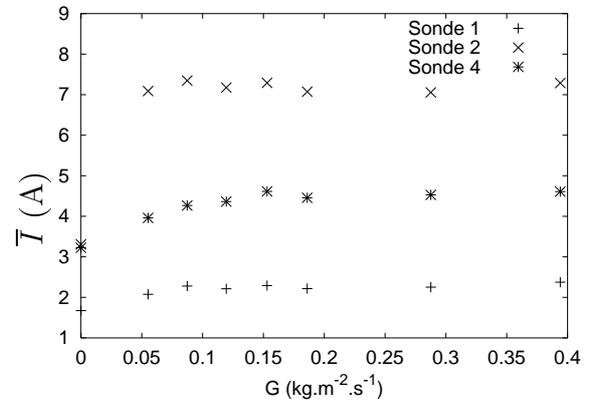
FIG. 5.10 – Exemples de signaux transmis par les microélectrodes

5.4.3 Analyse statistique et fréquentielle

Les figures (5.11) et (5.12) présentent les différentes grandeurs statistiques calculées à partir des signaux de courant limite en fonction du débit de gaz pour deux débits liquides.

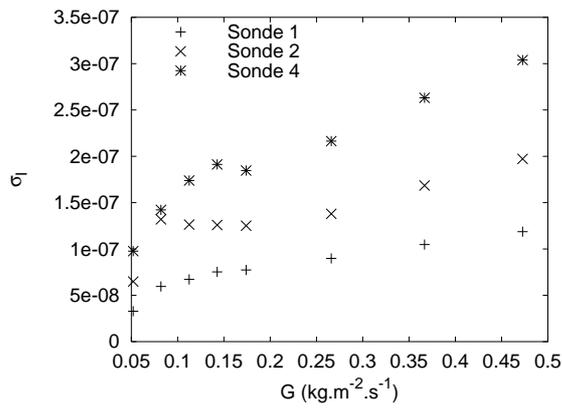


(a) $L=6,9 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

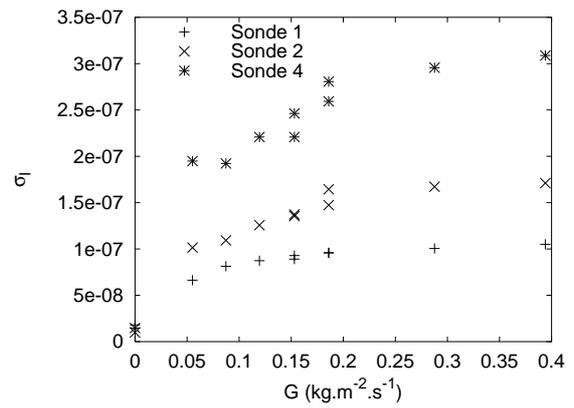


(b) $L=22 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

FIG. 5.11 – Moyennes des signaux



(a) $L=6,9 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$



(b) $L=22 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

FIG. 5.12 – Ecartis types des signaux

Comme on l'avait déjà remarqué en écoulement monophasique, et pour les mêmes raisons (positionnement), les gradients de vitesse mesurés sur la sonde 1 sont très faibles.

Le coefficient de transfert moyen semble peu dépendant du débit de gaz, une légère variation étant tout de même observée après la transition ruisselant-pulsé. On pouvait s'attendre à une augmentation de ce coefficient avec G , la vitesse intersticielle de liquide augmentant. Cependant, la variation de vitesse intersticielle de liquide dans la gamme de débits de gaz considérés est faible (de l'ordre de 10 %). Il est probable que le passage de bulles de gaz près de la sonde (en régime de fortes interactions) soit la cause de cette diminution de la moyenne du signal.

L'écart type des signaux augmente par contre avec G , de même que le taux de fluctuations. Là encore, ces fortes variations s'expliquent par la présence croissante de bulles de gaz près de l'électrode. Elles ne quantifient probablement pas l'hydrodynamique liquide local de la même façon qu'en écoulement monophasique.

Le taux de fluctuation Θ_I des signaux, porté sur la figure (5.13), ne présente pas de façon évidente une variation brutale susceptible d'indiquer un changement de régime hydrodynamique, comme c'était le cas en écoulement de liquide seul. On peut cependant observer sur la figure (5.13(a)) l'augmentation de Θ_I à partir de $G = 0,17 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ environ, qui correspondrait à la transition de régime. Un comportement similaire, mais plus marqué, du taux de fluctuation du signal avait déjà été observé par Rode (1992). Par ailleurs, les fluctuations observées sont nettement plus importantes que celles mesurées en écoulement monophasique pour un même débit de liquide.

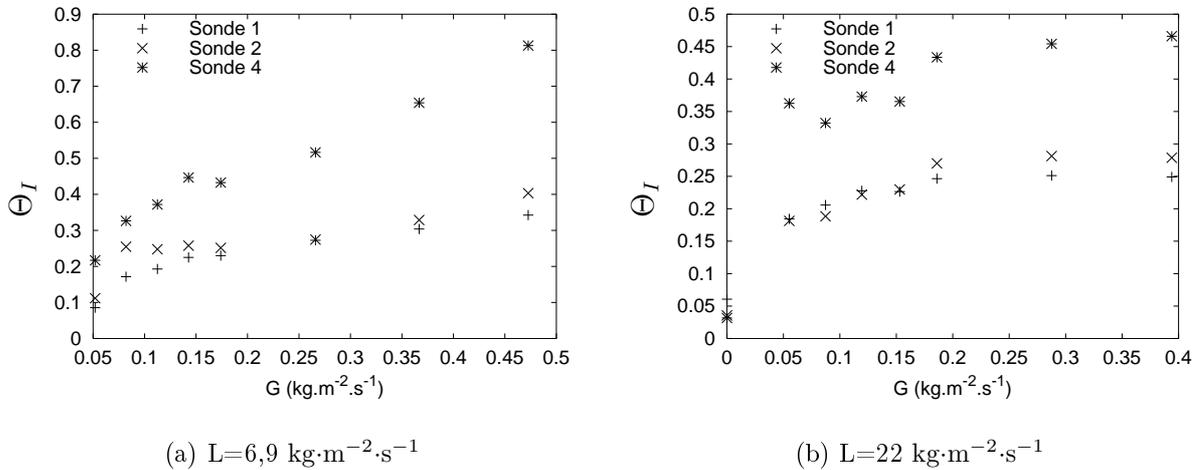
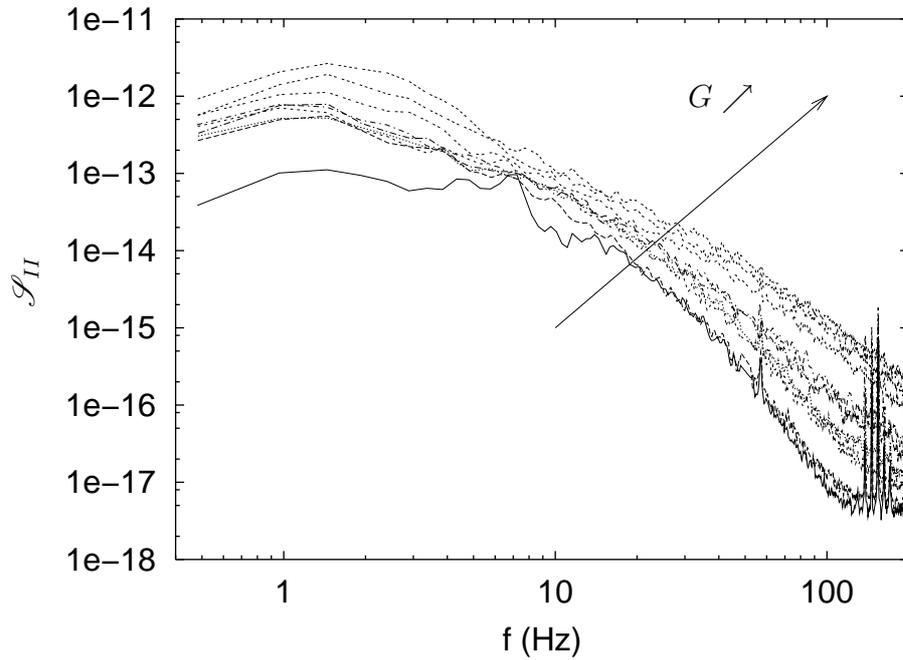


FIG. 5.13 – Taux de fluctuation des signaux des microélectrodes

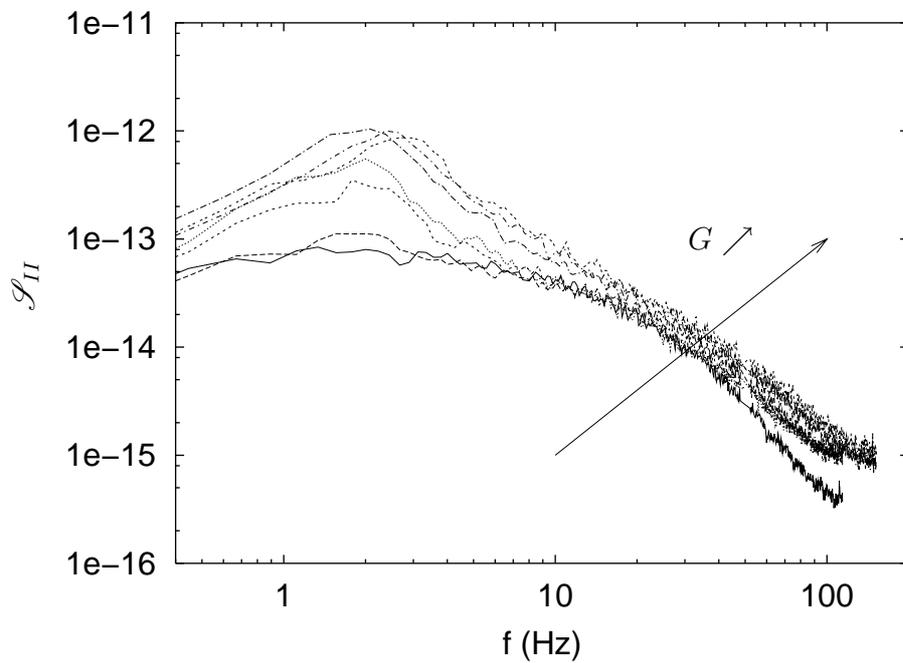
Les tracés des densités spectrales de puissance \mathcal{S}_{II} des signaux de courant à différents débits sont portés sur la figure (5.14). On peut constater l'existence d'une fréquence caractéristique lorsque le régime est pulsé. Cette fréquence est de l'ordre de 2 Hz, et varie légèrement avec G pour un même débit liquide, en particulier pour les forts débits liquides. Sa détermination exacte est difficile, comme dans le cas des signaux de pression. Cette fréquence correspond apparemment au passage des bouchons de gaz.

Si on présente les spectres \mathcal{S}_{II} obtenus pour un débit liquide donné à divers débits gazeux, on peut constater – figure (5.14) –, outre l'effet des pulsations, un élargissement des spectres vers les hautes fréquences, qui reste cependant assez peu marqué (on le remarque en particulier pour les faibles débits de liquide). Si l'on fait un parallèle avec les résultats obtenus en écoulement monophasique, on peut dire que la nature de l'écoulement du liquide est turbulente, quel que soit le régime d'écoulement. Par contre, la contribution des hautes fréquences (« turbulentes ») est plus élevée pour des régimes de fortes interactions.

Il faut cependant nuancer ces assertions, car les spectres considérés proviennent directement des signaux. Il ne s'agit donc pas réellement des spectres du gradient de vitesse. L'utilisation des fonctions de transferts (1.23) et (1.24) ne conduit pas à des résultats satisfaisants : il se pose alors la question de la pertinence de l'utilisation de telles fonctions dans un écoulement diphasique.



(a) $L=6,9 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1} - G = \{0,053; 0,083; 0,11; 0,14; 0,17; 0,27; 0,37; 0,47\} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$



(b) $L=22 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1} - G = \{0,055; 0,087; 0,12; 0,15; 0,19; 0,29; 0,39\} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$

FIG. 5.14 – Spectres de puissance des signaux – Sonde 2

5.4.4 Intercorrélation des mesures

Comme on l'avait déjà observé en écoulement de liquide seul, la corrélation maximale se produit à temps nul lorsqu'elle existe. En particulier, on n'observe pas de maximum distinct sur les mesures en écoulement dispersé.

Le coefficient de corrélation à temps nul $C_{xy}(0)$ augmente régulièrement avec le débit de gaz, comme on peut le voir sur la figure (5.15). On peut donc penser qu'il n'est pas lié à la nature turbulente de l'écoulement, comme dans le cas monophasique.

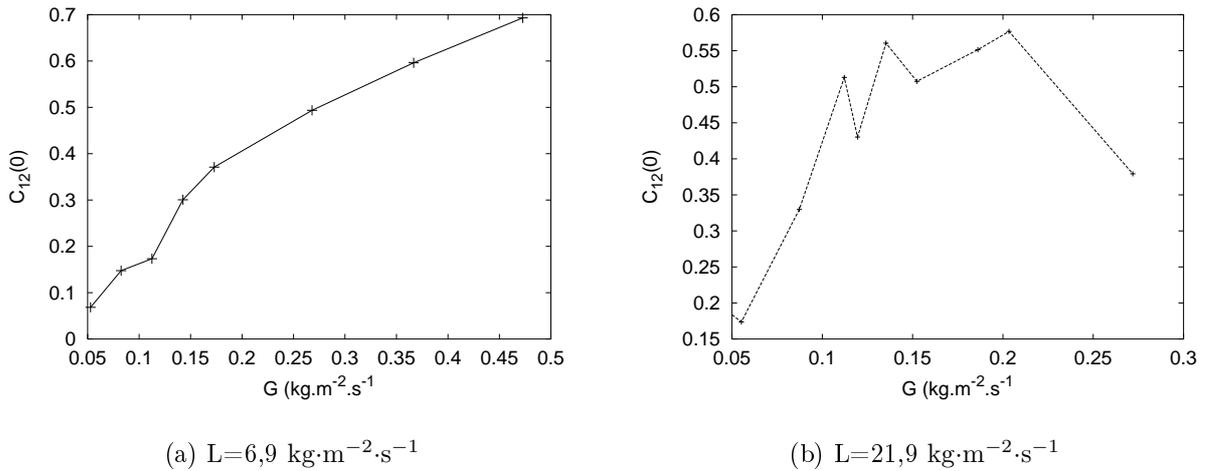


FIG. 5.15 – Coefficient de corrélation des signaux – Sondes 1 et 2

Par ailleurs, on n'observe pas de nette différence entre $C_{xy}(0)$ à fort et à faible débit liquide.

Il semble donc que le coefficient d'intercorrélacion ne traduise pas ici la nature microscopique de l'écoulement du fluide, comme c'était le cas en écoulement monophasique, mais plutôt un phénomène global. Il peut s'agir par exemple des pulsations macroscopiques, bien que l'augmentation de $C_{xy}(0)$ débute avant l'apparition de ces pulsations.

5.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons étudié expérimentalement les écoulements gaz-liquide dans un réacteur à lit fixe. Nous avons présenté des résultats concernant les caractéristiques hydrodynamiques des écoulements pulsés, obtenus à l'aide de sondes de pression implantées à la paroi du réacteur. Nous avons pu déterminer les fréquences et les vitesses moyennes des pulsations, dont l'évolution n'est pas quantitativement en accord avec les résultats de la littérature, bien que les relations de Tsochatzidis et Karabelas (1995) soient qualitativement applicables. La détermination de ces caractéristiques de l'écoulement pulsé n'est pas aussi simple qu'il y paraît. En effet, les signaux obtenus peuvent conduire à des distributions de temps de passage non unimodales. Par ailleurs, les signaux sont obtenus à la paroi du réacteur, ce qui ne permet pas de qualifier l'écoulement

dans sa zone centrale. Enfin, le désaccord avec les relations déjà établies peut en partie s'expliquer par la nécessité d'utiliser un modèle pour le taux de saturation liquide s_L , paramètre important de ces relations.

L'utilisation de micro-électrodes implantées dans le lit n'a pas donné de résultats aussi concluants quant à la nature de l'écoulement que ceux à la paroi du réacteur (Rode, 1992; Naderifar, 1995). On retiendra en premier lieu que les mesures effectuées en paroi sont insuffisantes pour caractériser l'écoulement dans le sein du milieu poreux. On peut cependant penser que la nature de l'écoulement de liquide local dans le pore est assez peu modifiée par le changement de régime hydrodynamique, et qu'elle présente certaines caractéristiques d'un écoulement turbulent (large gamme de fréquence des spectres de puissance). Malgré tout, on ne peut, sur la base de ces résultats, conclure définitivement quant à l'hydrodynamique locale dans le pore. Notons que la différence entre les mesures internes et celles effectuées en paroi est très importante, preuve supplémentaire qu'il faut se garder d'extrapoler les résultats obtenus à la paroi (en particulier dans le cas de l'écoulement gaz-liquide).

Conclusion générale et perspectives

Was mich nicht umbringt, macht mich stärker
Ce qui ne me tue pas, me rends plus fort

Friedrich NIETZSCHE – Le Crépuscule des Idoles

Conclusions

L'objectif de ce travail était d'apporter une meilleure compréhension des phénomènes hydrodynamiques et de transfert de matière dans les réacteurs à lit fixe.

La première partie de cette étude concerne la modélisation de ces phénomènes. Dans le chapitre 2, nous avons proposé différents modèles pour les écoulements de liquide seul. Nous avons montré que l'utilisation de l'équation de Hsu et Cheng (1990) conduisait à des résultats plus satisfaisants que celle de Vafai et Tien (1981), pourtant communément employée. Nous avons également pu souligner l'importance des termes advectifs dans la distribution des fluides. Les valeurs calculées du gradient de vitesse à la paroi sont nettement supérieures à celles obtenues expérimentalement ; des valeurs correctes peuvent cependant être calculées en utilisant un terme de viscosité modifié. Les résultats obtenus après résolution des différents modèles de transfert de matière exposés ont été confrontés à des valeurs expérimentales du coefficient de transfert de matière pariétal. Si le modèle à deux zones permet d'obtenir des résultats très satisfaisants, la résolution numérique de l'équation moyenne de transfert conduit à des résultats systématiquement sous-estimés. Il semble que l'ajout d'un terme supplémentaire (de dispersion axiale) soit nécessaire pour bien rendre compte des phénomènes. Par ailleurs, nous avons montré l'importance du choix des paramètres de calcul, en particulier du type de maillage, lors de la simulation du transfert de matière.

Au chapitre 3, nous avons présenté un modèle hydrodynamique simplifié pour les écoulements de gaz et de liquide en régime de faibles interactions. La résolution numérique de ce modèle dans notre cas conduit à des résultats globalement satisfaisants (la perte de charge calculée, en particulier, est correcte), mais une modification doit être envisagée pour mieux tenir compte de l'effet de la paroi. L'existence d'un front de propagation du liquide a nécessité l'utilisation de techniques numériques particulières, mais a bien été prise en compte.

La seconde partie de l'étude porte sur l'analyse expérimentale de l'hydrodynamique dans le réacteur. Nous avons en particulier étendu la technique de mesure locale de gradi-

ent pariétal de vitesse par microélectrodes en paroi inerte en utilisant des sondes insérées au sein du lit.

Dans le cas de l'écoulement de liquide seul à travers le milieu poreux (chapitre 4), nous avons montré la différence sensible existant entre les mesures en paroi (Latifi, 1988; Rode, 1992; Naderifar, 1995) et celles au centre du réacteur. La connaissance des écoulements locaux dans ces milieux ne saurait donc se satisfaire des mesures effectuées à la paroi, et l'usage de sondes internes est donc nécessaire. Nous avons également déterminé les limites de transition entre les différents régimes hydrodynamiques, et confirmé le comportement de type turbulent du fluide aux forts débits. La taille des agrégats de fluide a pu être déterminée, en analysant les temps caractéristiques des signaux obtenus à partir des fonctions d'autocorrélation. Ces mesures ont été confirmées par la décorrélation des signaux provenant des différentes électrodes.

De plus, nous avons appliqué un modèle de renouvellement de surface aux signaux issus des microélectrodes, les distributions de temps de contact étant déterminées en utilisant la méthode VITA. Le modèle de renouvellement de surface peut, à partir d'un certain débit de fluide correspondant au comportement turbulent, prédire la valeur du gradient de vitesse moyen sur l'électrode. Ce résultat est intéressant en ce sens que les informations utilisées pour le calcul des gradients de vitesse théoriques et expérimentaux proviennent du même signal. Il permet de déterminer les paramètres de la méthode VITA, ce qui pourrait permettre de développer des analogies entre les différents transferts.

Pour un écoulement à co-courant de gaz et de liquide (chapitre 5), les signaux délivrés par les sondes internes ne sont pas exploitables comme ceux obtenus en écoulement de liquide seul ou ceux obtenus à la paroi dans les mêmes conditions. Nous avons en outre caractérisé l'hydrodynamique des écoulements pulsés en mesurant la pression à la paroi du réacteur. Nous avons ainsi obtenu les fréquences et les vitesses de passage des pulsations.

Perspectives

La simulation de l'écoulement monophasique ne prend actuellement pas en compte le comportement turbulent observé à des débits assez grands. On peut envisager l'ajout de termes de turbulence dans les équations de conservation moyennes, termes qui pourront être déterminés à partir des mesures effectuées sur les microélectrodes. Pour ce qui est du transfert de matière, la prise en compte d'un terme de dispersion axiale dans les équations moyennes devrait permettre une meilleure adéquation entre les résultats expérimentaux et simulés. Le calcul numérique en sera cependant nettement compliqué.

Dans le cas de l'écoulement à co-courant vers le bas de gaz et de liquide, la prise en compte des interactions fluide-fluide nécessite le remaniement du code de calcul. En particulier, il faudra résoudre les équations d'origine (formulation vitesses-pressions-saturation) et non les équations modifiées (formulation pression-saturation). Les résultats éventuels obtenus pour le régime pulsé pourront être comparés aux mesures de fréquences et vitesses des pulsations présentées dans le chapitre 5. Par ailleurs, notre modèle doit être revu afin de mieux prendre en compte l'écoulement près de la paroi.

Concernant les résultats expérimentaux, il est possible que le modèle de renouvellement de surface soit applicable aux transferts de chaleur et de matière. Ceci fournirait une analogie intéressante, mais demande à être vérifié. Il faudra donc effectuer des mesures de

coefficient local de transfert de matière, que l'on peut réaliser à l'aide de microélectrodes insérées dans une paroi (une bille) conductrice polarisée. Par ailleurs, le problème de l'applicabilité des fonctions de transfert pourrait être résolu en utilisant des électrodes de plus faible dimension. Vu les difficultés de réalisation et d'implantation des sondes actuellement utilisées, il semble cependant que le recours à des techniques de micromécanique devienne nécessaire pour des électrodes plus petites.

Enfin, il semble difficile d'utiliser les microélectrodes en écoulement gaz-liquide, ce qui limite les possibilités de mesures locales. Dans cette optique, il serait intéressant de considérer la possibilité d'insertion de micro-capteurs de pression en lieu et place des électrodes.

Bibliographie

- F. Baleras. *Un capteur électrochimique pour la mesure locale d'un champ de vitesse tridimensionnel. Réalisation par des techniques microélectroniques et application à l'étude de l'écoulement dans une cellule à jet immergé.* PhD thesis, Université de Paris-Sud, 1995.
- A.J. Bard et L.R. Faulkner. *Electrochemical methods.* John Wiley and Sons, Inc., 1980.
- R.F. Benenati et C.B. Brosilow. Void fraction distribution in beds of spheres. *AIChE Journal*, 8(3) :359–361, 1962.
- E.G. Biskis et J.M. Smith. Pulsation in a fixed-bed reactor. *AIChE Journal*, 9(5) : 677–680, 1963.
- R.F. Blackwelder et R.E. Kaplan. On the wall structure of the turbulent boundary layer. *J. Fluid Mech.*, 76 :89–112, 1976.
- J.R. Blok et A.A.H. Drinkenburg. Hydrodynamic properties of pulses in two-phase down-flow operated packed columns. *Chem. Eng. J.*, 25 :89–99, 1982.
- A. Burghardt, G. Bartelmus, et A. Gancaczyk. Hydrodynamics of pulsing flow in three-phase chemical reactors. *Chemical Engineering and Processing*, 38 :411–426, 1999.
- J.C. Charpentier et M. Favier. Some liquide holdup experimental data in trickle-bed reactors for foaming and nonfoaming hydrocarbons. *AIChE J.*, 21(6) :1213–1218, 1975.
- Y. Cohen et A.B. Metzner. Wall effects in laminar flow of fluids through packed beds. *AIChE Journal*, 27(5) :705–715, 1981.
- P.V. Danckwerts. Significance of liquid film coefficients in gas absorption. *Ind. Eng. Chem.*, 43(6) :1460, 1951.
- C. Deslouis, O. Gil, et B. Tribollet. Frequency response of small electrodes to hydrodynamic or to potential perturbations. *Electrochimica Acta*, 38(14) :1847–1856, 1993.
- A. Dybbs et R.V. Edwards. *A new look at porous media fluid mechanics - Darcy to turbulent*, pages 199–256. Number 82 in NATO ASI Series E :Applied Sciences. Martinus Nijhoff, 1984.
- J.M.H. Fortuin, E.E. Musschenga, et P.J. Hamersma. Transfer processes in turbulent pipe flow described by the ERSR model. *AIChE Journal*, 38(3) :343–362, 1992.

- G. Gagneux et M. Madaune-Tort. *analyse mathématique de modèles non linéaires de l'ingénierie pétrolière*. Number 22 in *Mathématiques et Applications*. Springer, 1996.
- A. Gianetto et V. Specchia. Trickle-bed reactors : state of art and perspectives. *Chemical Engineering Science*, 47(13/14) :3197–3213, 1992.
- M. Giese, K. Rottshaffer, et D. Vortmeyer. Measured and modeled superficial flow profiles in packed beds with liquid flow. *AIChE Journal*, 44(2) :484–490, 1998.
- V.M. H. Govindarao et G.F. Froment. Voidage profiles in packed beds of spheres. *Chemical Engineering Science*, 41(3) :533–539, 1986.
- W.G. Gray et K. O'Neill. On the general equations for flow in porous media and their reduction to darcy's law. *Water Resource Research*, 12(2) :148–154, 1976.
- K. Grosser, R.G. Carbonell, et S. Sundaresan. Onset of pulsing in two-phase cocurrent downflow through a packed bed. *AIChE Journal*, 34(11) :1850–1860, 1988.
- G.I. Horowitz, A.L. Cukierman, et M.C. Cassanello. Flow regime transition in trickle beds packed with particles of different wetting characteristics – check-up on new tools. *Chemical Engineering Science*, 52(21-22) :3747–3755, 1997.
- C.T. Hsu et P. Cheng. Thermal dispersion in a porous medium. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 33(8) :1587–1597, 1990.
- Y. Jiang, M.R. Khadilkar, M.H. Al-Dahhan, et M.P. Dudukovic. Two-phase flow distribution in 2d trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 54 :2409–2419, 1999.
- A.V. Johansson et P.H. Alfredsson. On the structure of turbulent channel flow. *J. Fluid Mech.*, 122 :295–314, 1982.
- K.R. Jolls et T.J. Hanratty. Transition to turbulence for flow through a dumped bed of spheres. *Chemical Engineering Science*, 21 :1185–1190, 1966.
- R. Kufner et H. Hofmann. Implementation of radial porosity and velocity distribution in a reactor model for heterogeneous catalytic gasphase reactions (torus-model). *Chemical Engineering Science*, 45(8) :2141–2146, 1990.
- F. Larachi. *Les réacteurs triphasiques à lit fixe à écoulement à co-courant vers le bas et vers le haut de gaz et de liquide ; étude de l'influence de la pression sur l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz-liquide*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1991.
- M.A. Latifi. *Analyse globale et locale des phénomènes de transfert de matière liquide-solide dans un réacteur à lit fixe fonctionnant à co-courant vers le bas de gaz et de liquide*. PhD thesis, Institut national Polytechnique de Lorraine, 1988.
- M.A. Latifi, F. Lesage, et N. Midoux. A two-zone model for liquid-to-wall mass transfer in packed-bed reactor with single phase liquid flow. *Computers chem. Engng*, 22 : S905–S908, 1998.

- M.A. Latifi, N. Midoux, A. Storck, et J.N. Gence. The use of micro-electrodes in the study of the flow regimes in a packed bed reactor with single phase liquid flow. *Chemical Engineering Science*, 44(11) :2501–2508, 1989.
- M.A. Latifi, S. Rode, N. Midoux, et A. Storck. Hydrodynamic study of a trickle-bed reactor by means of microelectrodes : analysis of the probability densities. *Chemical Engineering Science*, 47 :2331–2336, 1992.
- F. Lesage, M.A. Latifi, et N. Midoux. Boundary element method in modelling of hydrodynamics and liquid-to-wall mass transfer in a packed-bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 55 :455–460, 2000. Presented at the 13th International Congress of Chemical and process Engineering - CHISA'98.
- M.C. Leverett. Capillary behavior in porous solids. *Trans. AIME*, 142 :159, 1941.
- S.C. Ling. Heat transfer from a small isothermal spanwise strip on an insulated boundary. *Trans. ASME C : J. Heat Transfer*, 85 :230–236, 1963.
- S.A. Logtenberg, M. Nijemeisland, et A.G. Dixon. Computational fluid dynamics simulations of fluid flow and heat transfer at the wall-particle contact points in a fixed-bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 54 :2433–2439, 1999.
- E. Maucci. *Etude de l'effet de phénomènes hydrodynamiques transitoires sur le transfert de matière et de chaleur dans les réacteurs polyphasiques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1999.
- J. Max. *Traitement du signal et applications aux mesures physiques*, volume 1. Masson, 4 édition, 1985.
- C McGreavy, E A Foumeny, et K H Javed. Characterization of transport properties for fixed bed in terms of local bed structure and flow distribution. *Chem. Eng. Sci.*, 41(4) : 787–797, 1986.
- T.R. Melli, J.M. De Santos, W.B. Kolb, et L.E. Scriven. Cocurrent downflow in networks of passages. microscale roots of macroscale flow regimes. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 29 : 2367–2379, 1990.
- N. Midoux. *Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique*. Tec et Doc. Lavoisier, Paris, 1984.
- G.E. Mueller. Prediction of radial porosity distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers. *Chemical Engineering Science*, 46 (2) :706–708, 1991.
- G.E. Mueller. Radial void fraction distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers. *Powder Technology*, 72 :269–275, 1992.
- A. Naderifar. *Etude expérimentale locale et globale du transfert de matière liquide/solide à la paroi d'un réacteur à lit fixe*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995.

- V.E. Nakoryakov, O.N. Kashinsky, et B.K. Kozmenko. Electrochemical method for measuring turbulent characteristics of gas-liquid flows. Dans *Measuring techniques in Gas-liquid two-phase flows*, pages 695–721, Nancy (France), 1983. IUTAM Symposium.
- K.M. NG. A model for flow regime transitions in cocurrent down-flow trickle-bed reactors. *AIChE Journal*, 32(1) :115–122, 1986.
- S. Osher. Riemann solvers, the entropy condition, and difference approximations. *SIAM J. Numer. Anal.*, 21(2) :217–235, 1984.
- J.N. Papageorgiou et G.F. Froment. Simulation models accounting for radial voidage profiles in fixed-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 50(19) :3043–3056, 1995.
- F. Paris et J. Cañas. *Boundary element method - Fundamentals and applications*. Oxford Science Publications, 1997.
- S.V. Patankar. *Numerical heat transfer and fluid flow*. Hemisphere publishing corporation, 1980.
- P. Perré et A. Degiovanni. Simulation par volumes finis des transferts couplés en milieux poreux anisotropes : séchage du bois à basse et à haute température. *Int. J. Heat. Mass Transfer*, 33(11) :2463–2478, 1990.
- R.M. Propp. *Numerical modelling of a trickle bed reactor*. PhD thesis, University of California – Berkeley, 1998.
- M. Quintard et S. Whitaker. Transport in ordered and disordered porous media : volume-averaged equations, closure problems and comparison with experiments. *Chemical Engineering Science*, 48(14) :2537–2564, 1993.
- P.A. Ramachandran. Application of the boundary elements method to non-linear diffusion with reaction problems. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 29 :1021–1031, 1990.
- P.A. Ramachandran. A numerical solution method for boundary value problems containing an undetermined parameter. *Journal of Computational Physics*, 102 :63–71, 1992.
- L.P. Reiss et T.J. Hanratty. An experimental study of the unsteady nature of the viscous sublayer. *AIChE Journal*, 9(2) :154–160, 1963.
- K. Ridgway et K.J. Tarbuck. Voidage fluctuations in randomly-packed beds of spheres adjacent to a containing wall. *Chemical Engineering Science*, 23 :1147–155, 1968.
- S. Rode. *Analyse spatio-temporelle des phénomènes hydrodynamique et de transfert de matière au sein d'un réacteur à lit fixe opérant en écoulement monophasique de liquide ou en co-courant vers le bas de gaz et de liquide; mise en œuvre de la technique des microsondes électrochimiques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1992.

- J.A. Ruether, C.S. Yang, et W. Hayduk. Particle mass transfer during cocurrent downward gas-liquid flow in packed beds. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, 19 :103–107, 1980.
- E. Saadjan. *Phénomènes de transport et leur résolution numérique*. 1998.
- A.E. Sáez et R.G. Carbonell. Hydrodynamic parameters for gas-liquid cocurrent flow in packed beds. *AIChE Journal*, 31(1), 1985.
- A.E. Sáez, R.G. Carbonell, et J. Levec. The hydrodynamics of trickling flow in packed beds - part II :experimental observations. *AIChE Journal*, 32(3) :369–380, 1986.
- D. Seguin. *Contribution à l'étude du transfert de matière et des régimes d'écoulement dans des milieux poreux de structures variées*. PhD thesis, Université de Nantes, 1997.
- A. Souadnia. Modeling and simulation of two-phase flow distribution in trickle bed reactors. Communication personnelle, 2000.
- S. Sundaresan. Modeling the hydrodynamics of multiphase flow reactors : current status and challenges. *AIChE Journal*, 46(6) :1102–1105, 2000.
- D. Toye, P. Marchot, M. Crine, et G. L'Homme. Modelling of multiphase flow in packed beds by computer-assisted x-ray tomography. *Meas. Sci. Technol.*, 7 :436–443, 1996.
- N.A. Tsochatzidis et A.J. Karabelas. Properties of pulsing flow in a trickle bed. *AIChE Journal*, 41(11), 1995.
- K. Vafai et C.L. Tien. Boundary and inertia effects on flow and heat transfer at the interface region of a porous media. *Int. J. Heat. Mass Transfer*, 24 :195–203, 1981.
- J. Villiermaux. *Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs*. 1993.
- D. Vortmeyer et J. Schuster. Evaluation of steady flow profiles in rectangular and circular packed beds by a variational method. *Chem. Eng. Sci.*, 38 :1691–1699, 1983.
- D. Ziolkowski et S. Szustek. Effect of fluid velocity radial profile on the radial mass dispersion in a fluid stream in a packed bed tubular apparatus. *Chemical Engineering Science*, 44(5) :1195–1204, 1989.
- M.N. Özisik. *Heat conduction*. John Wiley & Son, 1980.
- H. Zoghliami. *Etude des transferts et écoulements réactifs en milieu poreux : application à un stockage de solides thermiquement instables*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1999.

Annexes

Annexe A

Modèle à deux zones : détail des calculs

Cette annexe présente le détail de la résolution analytique du modèle à deux zones. On rappelle qu'il s'agit de résoudre le système :

$$\frac{1}{Pe'_{r,c}} \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial x_c}{\partial \rho} \right) = \frac{\partial x_c}{\partial \xi} \quad 0 \leq \rho \leq \rho_u \quad (\text{A.1a})$$

$$\frac{1}{Pe'_{r,p}} \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial x_p}{\partial \rho} \right) = \frac{\partial x_p}{\partial \xi} \quad \rho_u \leq \rho \leq 1 \quad (\text{A.1b})$$

soumis aux conditions aux limites :

$$\xi = 0, \forall \rho \quad , \quad x_c = x_w = 1 \quad (\text{A.2a})$$

$$\rho = 0, \forall \xi \quad , \quad 0 \leq x_c \leq 1 \quad (\text{A.2b})$$

$$\rho = \rho_u, \forall \xi \quad , \quad x_c = x_w \quad (\text{A.2c})$$

$$\rho = \rho_u, \forall \xi \quad , \quad \varepsilon_w \frac{\partial x_w}{\partial \rho} = \varepsilon_c \frac{\partial x_c}{\partial \rho} \quad (\text{A.2d})$$

$$\rho = 1, \forall \xi \quad , \quad x_w = 0 \quad (\text{A.2e})$$

avec $Pe' = Pe/\varepsilon$.

On pose $x(\rho, \xi) = \Psi(\rho)\Gamma(\xi)$. Il vient :

$$\frac{1}{Pe'_r} \frac{1}{\rho} \frac{1}{\Psi(\rho)} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d\Psi}{d\rho} \right) = \frac{1}{\Gamma(\xi)} \frac{d\Gamma}{d\xi} \quad (\text{A.3})$$

Or cette équation reste valable pour tout le domaine de résolution $\Omega = [0; 1] \times [0; 1]$, donc chaque terme de (A.3) est constant et indépendant de la zone.

Posons donc :

$$\frac{1}{Pe'_r} \frac{1}{\rho} \frac{1}{\Psi(\rho)} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d\Psi}{d\rho} \right) = \frac{1}{\Gamma(\xi)} \frac{d\Gamma}{d\xi} = -\lambda^2 \quad (\text{A.4})$$

La constante est choisie négative pour correspondre à une fonction Γ décroissante, physiquement acceptable.

On va donc chercher la ou les constantes λ_n conduisant à des solutions acceptables.

On a facilement $\Gamma = \exp^{-\lambda_n^2 \xi}$.

Trouver Ψ revient donc à résoudre pour chaque zone :

$$\frac{1}{Pe'_{r,z}} \frac{1}{\rho} \frac{1}{\Psi(\rho)} \frac{d}{d\rho} \left(\rho \frac{d\Psi}{d\rho} \right) = -\lambda_n^2 \quad (\text{A.5})$$

dont la solution générale est de la forme :

$$\Psi_n = A_{z,n} J_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,z} \rho} \right) + B_{z,n} Y_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,z} \rho} \right)$$

où z représente c ou p .

(A.2b) donne $B_{c,n} = 0$ (car $\lim_{x \rightarrow 0} Y_0(x) = +\infty$)

On choisit $A_{c,n} = 1$, et on a donc :

$$\Psi_{c,n} = J_0 \left(\lambda \sqrt{Pe'_c \rho} \right) \quad (\text{A.6a})$$

$$\Psi_{p,n} = A_{p,n} J_0 \left(\lambda \sqrt{Pe'_p \rho} \right) + B_{p,n} Y_0 \left(\lambda \sqrt{Pe'_p \rho} \right) \quad (\text{A.6b})$$

Les conditions (A.2c), (A.2d) et (A.2e) donnent respectivement :

$$J_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,c} \rho_u} \right) = A_{p,n} J_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u} \right) + B_{p,n} Y_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u} \right) \quad (\text{A.7})$$

$$\frac{\mathcal{D}_c}{\mathcal{D}_p} \sqrt{\frac{Pe'_{r,c}}{Pe'_{r,p}}} J_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,c} \rho_u} \right) = A_{p,n} J_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u} \right) + B_{p,n} Y_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u} \right) \quad (\text{A.8})$$

$$A_{p,n} J_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u} \right) + B_{p,n} Y_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u} \right) = 0 \quad (\text{A.9})$$

Afin d'alléger l'écriture, on pose $\gamma_n = \lambda_n \sqrt{Pe'_{r,c} \rho_u}$, $\eta_n = \lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p} \rho_u}$, $K = \frac{\mathcal{D}_c}{\mathcal{D}_p} \sqrt{\frac{Pe'_{r,c}}{Pe'_{r,p}}}$

et on peut alors réécrire les conditions (A.7) à (A.9) sous forme matricielle :

$$\mathbf{A} \mathbf{V} = \mathbf{0} \Leftrightarrow \begin{pmatrix} J_0(\gamma_n) & -J_0(\rho_u \eta_n) & -Y_0(\rho_u \eta_n) \\ K J_1(\gamma_n) & -J_1(\rho_u \eta_n) & -Y_1(\rho_u \eta_n) \\ 0 & J_0(\eta_n) & Y_0(\eta_n) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ A_{p,n} \\ B_{p,n} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

On a donc, en notant $\Delta = J_0(\rho_u \eta_n) Y_1(\rho_u \eta_n) - J_1(\rho_u \eta_n) Y_0(\rho_u \eta_n) = -q_0(\rho_u \eta_n; \rho_u \eta_n)$:

$$A_{p,n} = \frac{1}{\Delta} (J_0(\gamma_n) Y_1(\rho_u \eta_n) - K J_1(\gamma_n) Y_0(\rho_u \eta_n)) \quad (\text{A.11})$$

$$B_{p,n} = \frac{1}{\Delta} (K J_1(\gamma_n) J_0(\rho_u \eta_n) - J_0(\gamma_n) J_1(\rho_u \eta_n)) \quad (\text{A.12})$$

On peut enfin calculer λ_n , toujours à partir de (A.10) en annulant le déterminant de la matrice \mathbf{A} , soit à résoudre :

$$-J_0(\gamma_n)J_1(\rho_u\eta_n)Y_0(\eta_n) - KJ_1(\gamma_n)J_0(\eta_n)Y_0(\rho_u\eta_n) + Y_1(\rho_u\eta_n)J_0(\eta_n)J_0(\gamma_n) + KY_0(\eta_n)J_0(\rho_u\eta_n)J_1(\gamma_n) = 0 \quad (\text{A.13})$$

L'expression des concentrations réduites est donc :

$$x_c = \sum_{n=1}^{\infty} C_n J_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{c,p}} \rho \right) \exp^{-\lambda_n^2 \xi} \quad (\text{A.14a})$$

$$x_p = \sum_{n=1}^{\infty} C_n \left(A_n J_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p}} \rho \right) + B_n Y_0 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_{r,p}} \rho \right) \right) \exp^{-\lambda_n^2 \xi} \quad (\text{A.14b})$$

où C_n est calculé par application de la condition (A.2a), soit :

$$C_n = 2 \frac{K\Phi_1 + \Phi_2}{\eta(u_c/u_p\Phi_3 + \Phi_4)} \quad (\text{A.15})$$

avec :

$$\Phi_1 = \rho_u J_1(\gamma) \quad (\text{A.16a})$$

$$\Phi_2 = A_i(J_1(\eta) - \rho_u J_1(\rho_u\eta)) + B_i(Y_1(\eta) - \rho_u Y_1(\rho_u\eta)) \quad (\text{A.16b})$$

$$\Phi_3 = \rho_u^2(J_1^2(\gamma) + J_0^2(\gamma)) \quad (\text{A.16c})$$

$$\begin{aligned} \Phi_4 = & A_i[J_1^2(\eta) + J_0^2(\eta) - \rho_u^2(J_1^2(\rho_u\eta) + J_0^2(\rho_u\eta))] + \\ & B_i[Y_1^2(\eta) + Y_0^2(\eta) - \rho_u^2(Y_1^2(\rho_u\eta) + Y_0^2(\rho_u\eta))] \\ & + 2A_iB_i [J_0(\eta)Y_0(\eta) + J_1(\eta)Y_1(\eta) \\ & - \rho_u^2 (J_0(\rho_u\eta)Y_0(\rho_u\eta) + J_1(\rho_u\eta)Y_1(\rho_u\eta))] \end{aligned} \quad (\text{A.16d})$$

En dérivant A.14b par rapport à ρ , il vient :

$$\frac{\partial x_p}{\partial \rho} = - \sum_{n=1}^{\infty} C_n \lambda_n \sqrt{Pe'_p} \left(A_n J_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_p} \rho \right) + B_n Y_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_p} \rho \right) \right) \exp^{-\lambda_n^2 \xi} \quad (\text{A.17})$$

Il suffit ensuite de calculer $k_d = \frac{D_{r,p}}{R_0} \int_0^1 \frac{\partial x_p}{\partial \rho} \Big|_{\rho=0} d\xi$, soit :

$$k_d = \frac{D_{r,p}}{R_0} \sqrt{Pe'_p} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n}{\lambda_n} \left[A_n J_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_p} \right) + B_n Y_1 \left(\lambda_n \sqrt{Pe'_p} \right) \right] [1 - \exp(-\lambda_n^2)] \quad (\text{A.18})$$

Annexe B

Convertisseur courant/tension

On présente ici le schéma détaillé du convertisseur/amplificateur utilisé en conjonction avec les microélectrodes.

Divers problèmes techniques sont apparus lors de la réalisation de cet appareillage, problèmes que nous souhaitons décrire ici, ainsi que les solutions apportées.

Rappelons rapidement les spécifications du montage. Il s'agissait de convertir un courant de l'ordre de la dizaine de nano-ampères en tension, tout en l'amplifiant suffisamment pour pouvoir le mesurer correctement à l'aide de la carte d'acquisition dont nous disposons (une amplification de 10^6 a été jugée satisfaisante). De plus, il fallait pouvoir réaliser un échelon de tension avec un temps de montée faible (afin d'étalonner correctement les microsondes). Enfin, le rapport signal/bruit devait être maintenu le plus élevé possible.

La suppression du bruit haute fréquence dans le signal de sortie a été réalisée par un simple filtre passe bas (présence d'un condensateur de 470 pF en parallèle avec la résistance R3 de 1 M Ω , non représenté sur le schéma). Cependant, la présence de ce filtre conduit à un temps de montée de l'échelon de tension (lors de la fermeture de l'interrupteur J4) non négligeable. Le choix de la capacité de filtrage a donc été un compromis entre un bon filtrage et un temps de montée acceptable. La valeur choisie donne un temps de 3 ms pour un filtre de fréquence de coupure $\simeq 340$ Hz.

Après différents essais d'une première version du convertisseur, nous avons remarqué la présence d'un signal de fréquence 100 Hz, qui semblait provenir d'un bruit de 50 Hz redressé et légèrement déformé. L'ajout de condensateurs de filtrage au niveau de l'alimentation a permis d'éliminer ce bruit parasite.

La technologie utilisée pour ce montage est relativement peu adaptée à nos besoins. Elle est en premier lieu relativement encombrante, et nous a contraint à l'utilisation d'une longueur important de fil entre les sondes et le boîtier ; la présence de ce fil peut donc induire certaines déformations dans le signal. Par ailleurs, bien que l'alimentation soit isolée du reste du montage, et malgré l'utilisation d'un transformateur toroïdal (qui rayonne donc très peu vers l'extérieur), on a constaté un rapport signal/bruit légèrement supérieur pour l'entrée la plus proche de l'alimentation.

Pour toutes ces raisons, nous préconisons, sur les conseils du service électronique du laboratoire, l'utilisation de la technologie CMS. Celle ci aurait été d'encombrement moindre, et aurait pu être disposée directement contre le réacteur, ce qui évitait l'utilisation

de longs fils parcourus par les microcourants. En outre, le rayonnement de l'alimentation aurait été moindre.

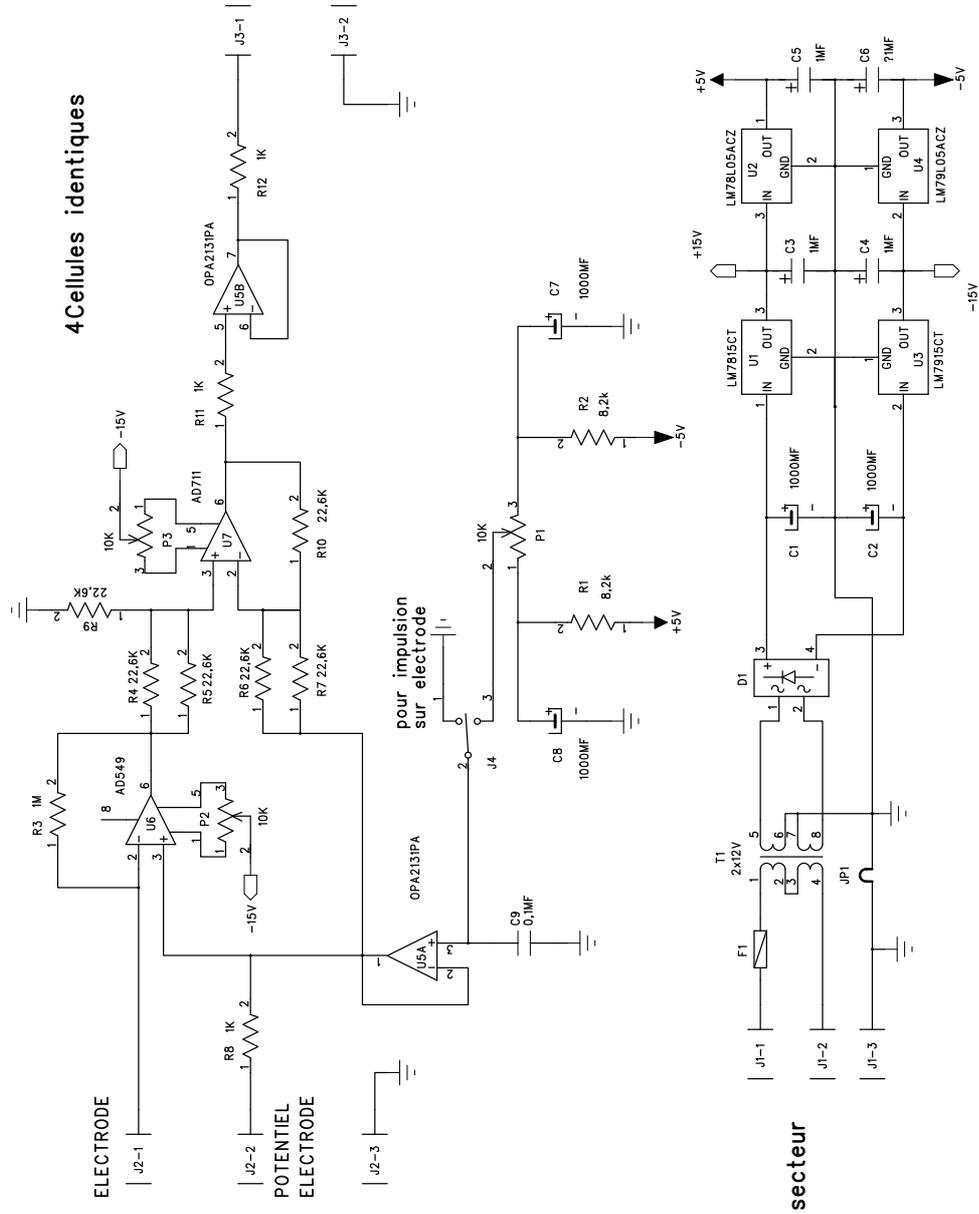


FIG. B.1 – Convertisseur courant-tension : schéma détaillé

Annexe C

Titration des solutions

Afin d'étalonner le spectrophotomètre d'absorption, il est nécessaire de connaître le titre exact en $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$ dans la solution. Ceci peut être réalisé grâce à un titrage par le sulfate de cobalt en milieu tampon ammoniacal, le suivi de la concentration en $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$ étant effectué par dosage ampérométrique.

C.1 Protocole opératoire

On prélève 50 ml (exactement) de solution de $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6$, que l'on complète par 50 ml de solution d'ammoniaque, 100 ml d'eau et 4 cuillères à soupe de NH_4Cl .

On dose le $\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}$ présent par ampérométrie sur électrode tournante, le potentiel choisi étant 3 mV / E.C.S. et la vitesse de rotation de l'électrode dépassant les 1000 tours/min. La solution est titrée par du CoSO_4 à 0,02 M, et on suit l'évolution de l'intensité en fonction du volume de sulfate de cobalt versé. On cherche ensuite l'intersection au point d'abscisse V_{CoSO_4} de la droite formée par ces points expérimentaux avec la droite située après le point d'inflexion, lequel correspond au point d'équivalence où $[\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}] \times 50 \cdot 10^{-3} = 2 \cdot 10^{-2} \times V_{\text{CoSO}_4}$ (cette seconde droite est normalement confondue avec l'axe des abscisses).

Cette concentration est ensuite comparée à la valeur renvoyée par le spectrophotomètre d'absorption dans la longueur d'onde $\lambda = 420$ nm. Pour des concentrations de l'ordre de 10^{-3} M en $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6$, il convient de diluer au dixième la solution avant de mesurer son absorbance, afin de se placer dans la plage de mesure de l'appareil.

C.2 Analyse des résultats

On trouvera sur la figure (C.1) le titrage d'une des solutions, et sur la figure (C.2) la courbe d'étalonnage du spectrophotomètre.

Nous avons finalement :

$$\boxed{[\text{Fe}(\text{CN})_6^{3-}] = 1,054 \cdot 10^{-2} \text{Abs} - 1,655 \cdot 10^{-4}} \quad (\text{C.1})$$

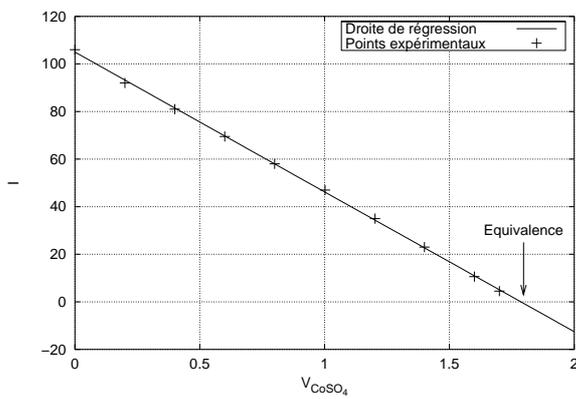


FIG. C.1 – Courbe de titrage

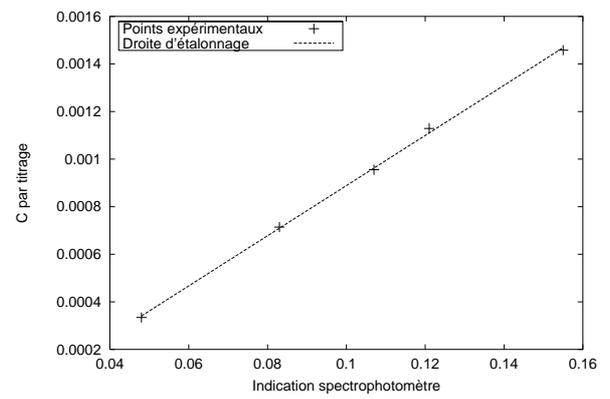


FIG. C.2 – Courbe d'étalonnage

Résumé

La première partie de ce travail traite de la modélisation et de la simulation de l'hydrodynamique et du transfert de matière dans les réacteurs à lit fixe arrosés. Le milieu poreux a été considéré comme un continuum par prise de moyenne des équations de transport microscopiques. Différents modèles prenant en compte l'effet de paroi de notre système ont été proposés, résolus et confrontés à des résultats expérimentaux. Les résultats obtenus sont assez satisfaisants, et ont permis de choisir les modèles les plus appropriés. Des modèles plus complexes, établis grâce aux résultats expérimentaux, devraient permettre d'améliorer la qualité des simulations.

Dans une seconde partie, l'étude locale de l'hydrodynamique a été menée, essentiellement à l'aide de microélectrodes insérées dans un pore, qui permettent la mesure par voie électrochimique des gradients de vitesse. En écoulement de liquide seul, les limites des régimes d'écoulement ont été déterminées. On a pu confirmer le comportement turbulent à fort débit et caractériser l'écoulement du fluide au sein d'un pore, notamment à l'aide des auto- et intercorrélations des mesures. Enfin, nous avons utilisé un modèle de renouvellement de surface couplé à la méthode VITA (Variable Interval Time Averaging) pour calculer le gradient de vitesse moyen. En écoulement gaz-liquide, la technique électrochimique est moins intéressante. Nous avons par contre pu caractériser les écoulements pulsés à l'aide de sondes de pression en paroi.

Mots-clés: RCLFA, réacteurs à lit fixe, mesures internes, sondes électrochimiques, simulation, hydrodynamique

Abstract

The first part of this work deals with modelling and simulating flow and mass transfer in trickle-bed reactors. Using spatial averaging of microscopic conservation equations, the porous medium was considered homogeneous. We proposed different models taking into account the system's wall effect. They were solved and comparison with previous experimental results allowed us to choose the best models. The development of more complex models using our experimental results should lead to more accurate simulations.

In the second part, we used microelectrodes inserted in a pore to measure velocity gradient, thus giving information about local hydrodynamics. For single phase liquid flow, flow regime transitions could be determined. A turbulent behaviour at high flow rate was observed, and could be characterized using auto- and intercorrelation functions. A surface renewal model gave access to mean velocity gradients, with the renewal times being computed using VITA (Variable Interval Time Averaging). For gas-liquid flows, electrochemical probes do not give interesting results. Nonetheless, pulsed flows could be studied using wall pressure transducers.

Keywords: Trickle bed reactors, fixed bed, internal probes, electrochemical measurements, simulation, hydrodynamics