



**HAL**  
open science

# Étude expérimentale et modélisation des mécanismes du séchage de boues industrielles

Layth Al Ahmad

► **To cite this version:**

Layth Al Ahmad. Étude expérimentale et modélisation des mécanismes du séchage de boues industrielles. Thermique [physics.class-ph]. Université de Lyon, 2020. Français. NNT : 2020LYSEI111 . tel-03213643

**HAL Id: tel-03213643**

**<https://theses.hal.science/tel-03213643v1>**

Submitted on 30 Apr 2021

**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.



N°d'ordre :NNT : 2020LYSEI111

## **THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON**

opérée au sein de  
**(L'INSA de Lyon)**

**Ecole Doctorale N° 162**

**Mécanique – Energétique – Génie civile – Acoustique**

**Spécialité/ discipline de doctorat** : Thermique Energétique

Soutenue publiquement le 24/11/2020, par :

**Layth AL AHMAD**

---

# **Étude expérimentale et modélisation des mécanismes du séchage de boues industrielles**

---

Devant le jury composé de :

GLOUANNEC, Patrick	Professeur des Universités	Université Bretagne Sud	Rapporteur
MARCOUX, Manuel	Maître de Conférences HDR	Université Paul Sabatier	Rapporteur
ARLABOSSE, Patricia	Professeur des Universités	IMT Mines d'Albi	Examinatrice
LEONARD, Angélique	Professeur	Université de Liège	Examinatrice
CLAUSSE, Marc	Professeur des Universités	INSA Lyon	Directeur de thèse
LATRILLE, Christelle	Docteur	CEA	Encadrante - CEA
GHAZAL, Roula	Docteur	Orano	Encadrante - Orano
BLANC-BISCARAT, Denise	Maître de Conférences	INSA Lyon	Encadrante - INSA

## Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales – Quinquennal 2016-2020

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
<b>CHIMIE</b>	<b>CHIMIE DE LYON</b> <a href="http://www.edchimie-lyon.fr">http://www.edchimie-lyon.fr</a> Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage <a href="mailto:secretariat@edchimie-lyon.fr">secretariat@edchimie-lyon.fr</a> INSA : R. GOURDON	<b>M. Stéphane DANIELE</b> Institut de recherches sur la catalyse et l'environnement de Lyon IRCELYON-UMR 5256 Équipe CDFA 2 Avenue Albert EINSTEIN 69 626 Villeurbanne CEDEX <a href="mailto:directeur@edchimie-lyon.fr">directeur@edchimie-lyon.fr</a>
<b>E.E.A.</b>	<b>ÉLECTRONIQUE, ÉLECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE</b> <a href="http://edeaa.ec-lyon.fr">http://edeaa.ec-lyon.fr</a> Sec. : M.C. HAVGOUDOUKIAN <a href="mailto:ecole-doctorale.eea@ec-lyon.fr">ecole-doctorale.eea@ec-lyon.fr</a>	<b>M. Gérard SCORLETTI</b> École Centrale de Lyon 36 Avenue Guy DE COLLONGUE 69 134 Écully Tél : 04.72.18.60.97 Fax 04.78.43.37.17 <a href="mailto:gerard.scorletti@ec-lyon.fr">gerard.scorletti@ec-lyon.fr</a>
<b>E2M2</b>	<b>ÉVOLUTION, ÉCOSYSTÈME, MICROBIOLOGIE, MODÉLISATION</b> <a href="http://e2m2.universite-lyon.fr">http://e2m2.universite-lyon.fr</a> Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 INSA : H. CHARLES <a href="mailto:secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr">secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr</a>	<b>M. Philippe NORMAND</b> UMR 5557 Lab. d'Ecologie Microbienne Université Claude Bernard Lyon 1 Bâtiment Mendel 43, boulevard du 11 Novembre 1918 69 622 Villeurbanne CEDEX <a href="mailto:philippe.normand@univ-lyon1.fr">philippe.normand@univ-lyon1.fr</a>
<b>EDISS</b>	<b>INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTÉ</b> <a href="http://www.ediss-lyon.fr">http://www.ediss-lyon.fr</a> Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 INSA : M. LAGARDE <a href="mailto:secretariat.ediss@univ-lyon1.fr">secretariat.ediss@univ-lyon1.fr</a>	<b>Mme Sylvie RICARD-BLUM</b> Institut de Chimie et Biochimie Moléculaires et Supramoléculaires (ICBMS) - UMR 5246 CNRS - Université Lyon 1 Bâtiment Curien - 3ème étage Nord 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69622 Villeurbanne Cedex Tel : +33(0)4 72 44 82 32 <a href="mailto:sylvie.ricard-blum@univ-lyon1.fr">sylvie.ricard-blum@univ-lyon1.fr</a>
<b>INFOMATHS</b>	<b>INFORMATIQUE ET MATHÉMATIQUES</b> <a href="http://edinfomaths.universite-lyon.fr">http://edinfomaths.universite-lyon.fr</a> Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage Tél : 04.72.43.80.46 <a href="mailto:infomaths@univ-lyon1.fr">infomaths@univ-lyon1.fr</a>	<b>M. Hamamache KHEDDOUCI</b> Bât. Nautibus 43, Boulevard du 11 novembre 1918 69 622 Villeurbanne Cedex France Tel : 04.72.44.83.69 <a href="mailto:hamamache.kheddouci@univ-lyon1.fr">hamamache.kheddouci@univ-lyon1.fr</a>
<b>Matériaux</b>	<b>MATÉRIAUX DE LYON</b> <a href="http://ed34.universite-lyon.fr">http://ed34.universite-lyon.fr</a> Sec. : Stéphanie CAUVIN Tél : 04.72.43.71.70 Bât. Direction <a href="mailto:ed.materiaux@insa-lyon.fr">ed.materiaux@insa-lyon.fr</a>	<b>M. Jean-Yves BUFFIÈRE</b> INSA de Lyon MATEIS - Bât. Saint-Exupéry 7 Avenue Jean CAPELLE 69 621 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.72.43.71.70 Fax : 04.72.43.85.28 <a href="mailto:jean-yves.buffiere@insa-lyon.fr">jean-yves.buffiere@insa-lyon.fr</a>
<b>MEGA</b>	<b>MÉCANIQUE, ÉNERGÉTIQUE, GÉNIE CIVIL, ACOUSTIQUE</b> <a href="http://edmega.universite-lyon.fr">http://edmega.universite-lyon.fr</a> Sec. : Stéphanie CAUVIN Tél : 04.72.43.71.70 Bât. Direction <a href="mailto:mega@insa-lyon.fr">mega@insa-lyon.fr</a>	<b>M. Jocelyn BONJOUR</b> INSA de Lyon Laboratoire CETHIL Bâtiment Sadi-Carnot 9, rue de la Physique 69 621 Villeurbanne CEDEX <a href="mailto:jocelyn.bonjour@insa-lyon.fr">jocelyn.bonjour@insa-lyon.fr</a>
<b>ScSo</b>	<b>ScSo*</b> <a href="http://ed483.univ-lyon2.fr">http://ed483.univ-lyon2.fr</a> Sec. : Véronique GUICHARD INSA : J.Y. TOUSSAINT Tél : 04.78.69.72.76 <a href="mailto:veronique.cervantes@univ-lyon2.fr">veronique.cervantes@univ-lyon2.fr</a>	<b>M. Christian MONTES</b> Université Lyon 2 86 Rue Pasteur 69 365 Lyon CEDEX 07 <a href="mailto:christian.montes@univ-lyon2.fr">christian.montes@univ-lyon2.fr</a>

\*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

## Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au laboratoire de Mesures et de Modélisation de la Migration des Radionucléides (L3MR) au sein du 'CEA - Commissariat à l'énergie nucléaire et aux énergies alternatives', en partenariat avec les laboratoires (CETHIL et DEEP) de l'INSA Lyon, sous la direction du **Professeur CLAUSSE Marc**.

Je souhaite avant tout remercier mon directeur de thèse **Professeur CLAUSSE Marc** d'avoir accepté de diriger ce travail. Je tiens à également remercier mes encadrantes : **Docteure LATRILLE Christelle**, **Docteure BLANC-BISCARAT Denise** et **Docteure GHAZAL Roula** pour leurs conseils, leur disponibilité et leurs encouragements qui m'ont permis de réaliser ce travail dans les meilleures conditions. Je tiens à exprimer ma gratitude à **Docteure LATRILLE Christelle** pour la confiance qu'elle m'a accordée et pour l'autonomie qu'elle m'a procurée ainsi que pour ses suggestions opportunes.

Je tiens à témoigner toute ma reconnaissance aux agents du CEA : **Madame HAINOS Delphine**, **Messieurs URVOY Stephane**, **BERNACHY-BARBE Fabien**, **IMBERT Christophe** et **GUILLOT William** pour leur contribution dans l'acquisition des données expérimentales nécessaires pour ce travail.

Je désire aussi remercier toute l'équipe du **L3MR**, pour leur contribution constructive et pour leur accueil chaleureux, qui a permis d'assurer un environnement de travail convivial.

Je tiens à remercier **Professeur GLOUANNEC Patrick** et **Docteur MARCOUX Manuel** pour avoir accepté d'évaluer ce travail en qualité de rapporteurs. Mes remerciements vont également à **Professeure ARLABOSSE Patricia** et à **Professeure LEONARD Angélique**, pour avoir accepté de participer au jury de thèse en qualité d'examinatrices.

Je tiens à remercier mes ami(e)s : **Hadi, Hammam, Ali, Mélodie, Majd, Mayez, Diana, Omar, Tala, Walid, Hala, Raya, Joumada, Sabine, Sophie, Anthony, Nayla, Hicham, Rabih, Hajer, Farah, Karim, Marina, Jowi, Bouthayna, Yara et Fouad** pour avoir partagé une amitié géniale qui me fait toujours sourire et ne me laisse jamais perdre d'espoir. Je me réjouis de partager avec eux de nombreux autres beaux moments de ma vie.

Je tiens à remercier mes tantes **Saja et Hawwa**, ainsi que tante **Ghada et Dania** pour m'avoir aimé inconditionnellement.

Bien sûr, je voudrais remercier très chaleureusement **Rania**, mes deux frères **Choureh** et **Daham**, ainsi que mes deux sœurs **Siba** et **Fahar**, pour avoir toujours été là pour moi et pour m'avoir soutenu infailliblement tout au long de ma vie. Enfin, je voudrais exprimer mon plus profond remerciement à mon père **Chebel**. Qu'il trouve dans la réalisation de mes travaux, l'aboutissement de ses efforts ainsi que l'expression de ma plus affectueuse gratitude. Maman, j'aurais aimé que tu sois à mon côté pour soutenir ma thèse, mais je suis également certain que tu me regardes avec fierté et bonheur.

## Résumé

Ce travail de thèse s'intéresse à l'étude expérimentale et à la modélisation des mécanismes du séchage de boues industrielles. Le partenaire industriel de cette thèse a proposé le procédé de séchage de boue *in situ*, qui vise le conditionnement de boues de co-précipitation issues du retraitement d'effluent radioactifs par séchage à l'intérieur d'un fût. Ce procédé permet d'éliminer l'eau de la boue par un traitement thermique sous vide. La finalité est d'obtenir une boue sèche et stable, avec la plus faible teneur en eau possible.

L'objectif principal de ce travail est alors d'identifier les phénomènes qui se produisent au sein de la boue au cours du séchage, d'identifier les processus physiques et chimiques mis en jeu afin de modéliser le séchage. Les phénomènes présents peuvent se regrouper en phénomènes de transferts (chaleur et de matière) et en rétrécissement. De plus, lors du séchage les concentrations en sels solubles augmentent dû à l'évaporation. A l'atteinte des seuils de solubilités, des sels précipitent mettant en évidence le phénomène de cristallisation qui n'intervient qu'en fin du séchage de la boue. Ces phénomènes dépendent principalement des paramètres de transferts qui varient en fonction des conditions opératoires du séchage (température, pression et humidité relative), de la teneur en eau de la boue et du retrait.

L'étude expérimentale de séchage comprend l'acquisition des caractéristiques intrinsèques de la boue en fonction de la teneur en eau, la température et la pression. Un modèle numérique qui simule le procédé de séchage de la boue à petite échelle est développé sous COMSOL-Multiphysics et prend en compte la géométrie déformable du matériau. Les mises en équations sont validées à partir des résultats expérimentaux. Un changement d'échelle est mis en œuvre avec la conception d'une maquette à l'échelle du laboratoire (1/23ème du fût industriel). Des expériences de séchage de boue réalisées à cette échelle sont dédiées à la validation du modèle. Une étude paramétrique et une étude de sensibilité sont également réalisées sur le modèle de séchage.

## Abstract

This thesis work focuses on the experimental study and modeling of the mechanisms of industrial sludge drying. The industrial partner of this thesis has proposed the process of *in situ* sludge drying, which aims at conditioning co-precipitation sludge from the reprocessing of radioactive effluents by drying inside a drum. This process allows the removal of water from the sludge by heat treatment under vacuum. The aim is to obtain a dry and stable sludge with the lowest possible water content.

The main objective of this work is then to identify the phenomena that occur within the sludge during drying, to identify the physical and chemical processes involved in order to model the drying process. The phenomena present can be grouped into transfer phenomena (heat and mass) and shrinkage. In addition, during drying the concentrations of soluble salts increase due to evaporation. When the solubility thresholds are reached, salts precipitate, highlighting the phenomenon of crystallization which only occurs at the end of the sludge drying process. These phenomena depend mainly on the transfer parameters which vary according to the operating conditions of the drying process (temperature, pressure and relative humidity), the water content of the sludge and the shrinkage.

The experimental drying study includes the acquisition of the intrinsic characteristics of the sludge as a function of water content, temperature and pressure. A numerical model that simulates the sludge drying process on small scale is developed under COMSOL-Multiphysics and takes into account the deformable geometry of the material. The equations are validated on the basis of the experimental results. A change of scale is implemented with the design of a lab-scale device (1/23rd of the industrial drum). Sludge drying experiments carried out at this scale are dedicated to the validation of the model. Parametric and sensitivity studies are also carried out on the drying model.

# Sommaire

Remerciements .....	3
Résumé.....	4
Abstract .....	5
Sommaire .....	6
Liste des Figures .....	10
Liste des Tableaux .....	14
Liste des Symboles .....	15
I. Introduction.....	19
II. Notions générales de séchage.....	27
1. Différentes formes de l'eau dans un matériau humide .....	29
2. L'activité de l'eau.....	30
3. Analyse des courbes de séchage .....	33
3.1. Courbe de la teneur en eau spécifique .....	33
3.2. Analyse globale de la courbe de vitesse de séchage.....	34
3.2.1. Période de préchauffage .....	35
3.2.2. Période de séchage à vitesse constante.....	35
3.2.3. Période de séchage à vitesse décroissante .....	36
3.3. Évolution de la température .....	37
4. Mécanismes référencés pour le séchage des boues.....	38
4.1. Transfert de masse .....	38
4.2. Transfert de chaleur .....	43
4.3. Retrait volumique.....	45
4.4. Cristallisation .....	46
5. Conclusions.....	47
Références.....	49
III. Matériel et méthodes de caractérisation des boues .....	53
1. Matériel.....	53
2. Propriétés thermiques.....	54
2.1. Conductivité thermique effective .....	55
2.1.1. Montage expérimental.....	55
2.1.2. Conditions opératoires.....	57
2.2. Capacité calorifique.....	58
3. Phénomène de retrait .....	59

3.1.	Compensation de la réduction du volume .....	60
3.2.	Étude micro-tomographique .....	61
3.2.1.	Principe de la micro-tomographie aux rayons X .....	61
3.2.2.	Description du micro-tomographe utilisé .....	62
3.2.3.	Paramètres d'acquisition et de reconstruction .....	63
3.2.4.	Analyse des niveaux de gris.....	64
3.2.5.	Détermination du retrait et de la teneur en eau à partir du niveau de gris .....	65
4.	Masse volumique apparente.....	68
5.	Cinétique expérimentale du séchage.....	69
5.1.	Montage expérimental.....	69
5.2.	Conditions expérimentales.....	71
5.3.	Isotherme de désorption d'eau.....	71
6.	Détermination du coefficient de diffusion d'eau apparent : Résolution numérique de l'équation de Richard .....	72
6.1.	Hypothèses du modèle.....	73
6.2.	Conditions initiales et aux limites.....	74
6.3.	Méthode de résolution.....	74
7.	Conclusions.....	76
	Références.....	77
IV.	Caractéristiques intrinsèques des boues : résultats expérimentaux .....	79
1.	Propriétés thermiques.....	79
1.1.	Conductivité thermique effective .....	79
1.2.	Capacité calorifique.....	81
2.	Phénomène de retrait .....	84
2.1.	Coefficient de retrait .....	85
2.2.	Évolutions du diamètre et de la hauteur.....	88
2.3.	Évolutions de la fraction volumique du gaz et de la surface d'échange .....	90
2.4.	Détermination et distribution spatiale de l'eau par analyse du niveau de gris .....	92
3.	Masse volumique apparente.....	95
4.	Cinétiques du séchage expérimentales.....	96
4.1.	Effet de la température .....	97
4.2.	Effet de l'humidité relative.....	99
4.3.	Effet de la pression de vide .....	101
5.	Isothermes de désorption de l'eau .....	102
6.	Coefficient de diffusion d'eau apparent.....	104
7.	Conclusions.....	106

Références.....	108
V. Maquette expérimentale à l'échelle du laboratoire .....	111
1. Maquette expérimentale .....	111
1.1. Instrumentation de la maquette .....	113
1.2. Instrumentation et mesures.....	115
2. Conditions expérimentales.....	118
2.1. Conditions opératoires.....	118
2.2. Propriétés de l'atmosphère.....	119
2.3. Terme de cinétique d'évaporation.....	120
3. Résultats expérimentaux de la maquette expérimentale à l'échelle du laboratoire.....	120
3.1. Premier essai de séchage .....	120
3.1.1. Cinétiques de séchage .....	120
3.1.2. Évolution des conditions opératoires.....	124
3.2. Deuxième et troisième essais de séchage.....	127
3.3. Retrait et cristallisation .....	130
4. Conclusions.....	132
Référence .....	134
VI. Modélisation du séchage.....	135
1. Modèle de séchage thermo-hydro-mécanique à petite échelle (modèle 1) .....	136
1.1. Équations constitutives .....	137
1.1.1. Transfert de masse .....	138
1.1.2. Transfert de chaleur .....	141
1.1.3. Déformation de la géométrie .....	142
1.2. Conditions initiales et aux limites.....	143
1.3. Validation du modèle 1 .....	144
1.4. Effet du retrait .....	146
2. Mise à l'échelle : modèle de séchage à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2) .....	148
2.1. Géométrie et équations constitutives.....	148
2.2. Conditions initiales et aux limites.....	151
2.3. Validation du modèle 2 .....	152
3. Conclusions.....	155
Références.....	156
VII. Modélisation numérique : résultats et discussion .....	157
1. Modèle à petite échelle (modèle 1) .....	157
1.1. Évolutions de la température et de la teneur en eau dans le modèle 1 avec et sans retrait .....	157

1.2.	Effet de la température et de la pression sur le temps de séchage requis.....	162
2.	Modèle à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2) .....	165
2.1.	Évolution de la température et de la teneur en eau dans le modèle 2 .....	165
2.2.	Critiques des hypothèses de modélisation.....	169
2.3.	Étude paramétrique .....	173
2.4.	Étude de sensibilité .....	176
2.5.	Simulation à l'échelle du fût industriel.....	179
3.	Conclusions.....	181
	Références.....	183
VIII.	Conclusions.....	185
	Annexe A : Traitement des images.....	189
	Annexe B : Caractéristiques intrinsèques de la boue.....	193
	Annexe C: Article scientifique soumis et en révision pour acceptation finale au journal « Environmental technology » .....	195

## Liste des Figures

Figure I-1 : Schéma conceptuel du processus de séchage étudié.....	21
Figure I-2 : Les différentes étapes de l'approche adoptée dans le cadre du travail de thèse. ....	22
Figure II-1 : Mécanismes de transfert de chaleur et de masse au sein de la boue avec retrait suivant les directions axiale et radiale.....	28
Figure II-2 : Différentes formes de l'eau dans un milieu poreux humide, adapté de [9].....	29
Figure II-3 : Différents types d'isothermes selon la classification de l'IUPAC [16]. ....	31
Figure II-4 : Évolution de la teneur en eau à l'équilibre avec l'activité de l'eau, adapté de [18]. ....	32
Figure II-5 : Courbe de séchage typique pour des conditions de séchage constantes : tracé de la teneur en eau spécifique en fonction du temps. ....	34
Figure II-6 : Courbe typique de vitesse de séchage spécifique pour des conditions de séchage constantes : tracé de la vitesse de séchage spécifique en fonction de la teneur en eau spécifique. $X_{cr1}/X_0$ et $X_{cr2}/X_0$ sont respectivement les teneurs en eau spécifiques auxquelles commencent la première et la deuxième partie de la période à vitesse de séchage décroissante. ....	35
Figure II-7 : Évolution de la température de surface pendant le séchage. ....	38
Figure II-8 : Mécanismes de transfert de masse associés à l'état de l'eau pendant le séchage de boue, adapté de [9]. ....	39
Figure II-9 : Mécanisme de transfert de chaleur pendant le séchage de la boue, adapté de [9]. ....	43
Figure III-1 : Montage expérimental de la méthode de la plaque chaude gardée pour la détermination de la conductivité thermique effective (T1, T2, T3 et T4 sont des capteurs de température Pt100)...	56
Figure III-2 : Acquisition des données de température par la méthode de la plaque chaude gardée. (a) Cellule thermique ; (b) Enregistreurs de données ; (c) Transmetteurs de température ; (d) Alimentation électrique. ....	57
Figure III-3 : Schéma d'un calorimètre (DSC) à flux de chaleur. ....	58
Figure III-4 : Méthode de compensation de la réduction de volume (boue A).....	61
Figure III-5 : Le principe de la micro-tomographie aux rayons X.....	62
Figure III-6 : Photo de l'appareil de micro-tomographie aux rayons X au CEA/DES/ISAS/DPC/SECR/LECBA.....	63
Figure III-7 : Application de la méthode des cylindres creux. ....	65
Figure III-8 : Montage expérimental pour la cinétique de séchage des boues. (1) Panneau de commande ; (2) Balance digitale ; (3) Dessiccateur; (4) Porte-échantillon ; (5) Étuve de séchage. ....	70
Figure III-9 : Organigramme du code de détermination du coefficient de diffusion apparent, basé sur la cinétique expérimentale de séchage.....	76
Figure IV-1 : Évolution de la conductivité thermique effective avec la teneur en eau spécifique ( $X_0 = 210\%$ ). ....	79
Figure IV-2 : Évolution de la température dans la cellule thermique pour un échantillon de boue A à $X = 80\%$ (T1, T2, T3 et T4 sont respectivement à 8, 6, 4 et 2 cm de hauteur de la plaque chauffante). ....	81
Figure IV-3 : (a) Évolution de la capacité calorifique en fonction de la température pour différentes teneurs en eau spécifiques des boues ( $X_0 = 210\%$ ) et (b) Évolution de la capacité calorifique moyenne en fonction de la teneur en eau.....	82
Figure IV-4 : Images 3D par tomographie aux rayons X de la boue A (a) humide et (b) sèche. Coupes transversales 2D de la boue A (c) humide et (d) sèche. Coupes verticales de la boue A (e) humide et (f) sèche.....	85

Figure IV-5 : Rapport des volumes de 30 g de boue avec la teneur en eau spécifique (a) boue A ( $X_0 = 210\%$ ) séchée à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $P_{obs} = 200$ ou $1000$ mbar; (b) boue B ( $X_0 = 380\%$ ) séchée à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $P_{obs} = 1000$ mbar. ....	86
Figure IV-6 : (a) Évolution des rapports des diamètres et des hauteurs avec la teneur en eau spécifique de la boue A (30 g) séchée à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $200$ mbar ( $X_0 = 210\%$ ). (b) Évolution des rapports des diamètres et des hauteurs avec la teneur en eau des boues A et B (30 g) à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $200$ mbar. ....	89
Figure IV-7 : Évolution de la fraction volumique des gaz avec la teneur en eau spécifique de la boue A (30 g) séchée à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $200$ mbar. ....	91
Figure IV-8 : Évolution du rapport des surfaces d'échange avec la teneur en eau spécifique de la boue A (30 g) séchée à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $200$ mbar. ....	92
Figure IV-9 : Évolution (a) radiale et (b) axiale du niveau de gris d'échantillons de 30 g de boue A (séchés à $65\text{ }^\circ\text{C}$ et $HR = 46\%$ ) avec la teneur en eau spécifique. ....	93
Figure IV-10 : Teneur en eau expérimentale et calculée en fonction du niveau de gris. ....	95
Figure IV-11 : Évolution de la masse volumique apparente de la boue avec la teneur en eau à $65\text{ }^\circ\text{C}$ , $HR = 46\%$ et $200$ mbar. ....	96
Figure IV-12 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction du temps, à différentes températures, $HR = 46\%$ et à pression atmosphérique. ....	97
Figure IV-13 : Vitesse de séchage spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) à différentes températures, $HR = 46\%$ et pression atmosphérique. ....	98
Figure IV-14 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction du temps, à $65\text{ }^\circ\text{C}$ et à pression atmosphérique, à différentes humidités relatives. ....	100
Figure IV-15 : Vitesse de séchage spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) à différentes conditions d'humidité relative, $65\text{ }^\circ\text{C}$ et à pression atmosphérique. ....	101
Figure IV-16 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction du temps, à des pressions absolues de $200$ , $350$ et $1000$ mbar, $65\text{ }^\circ\text{C}$ et $HR = 46\%$ . ....	102
Figure IV-17 : Isotherme de désorption de la boue A à $65\text{ }^\circ\text{C}$ : données expérimentales (losange noir) et données ajustées (lignes complètes). ....	103
Figure IV-18 : Estimation numérique du coefficient de diffusion d'eau apparent de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction de la teneur en eau spécifique, à $45$ , $55$ et $65\text{ }^\circ\text{C}$ . ....	105
Figure IV-19 : Résultats expérimentaux et simulés de la cinétique de séchage de la boue A à $50\text{ }^\circ\text{C}$ , $1000$ mbar et $HR = 46\%$ . ....	106
Figure V-1 : Maquette expérimentale instrumentée à l'échelle du laboratoire dédiée au séchage de la boue B. ....	112
Figure V-2 : Cuve instrumentée dédiée au séchage de la boue B. ....	113
Figure V-3 : Système de condensation de la vapeur d'eau produite lors du séchage de la boue. ....	114
Figure V-4 : (a) Balance industrielle et (b) ACT350 - transmetteur de pesée utilisé pour le pesage en continu de la boue. ....	115
Figure V-5 : Coupe transversale interne en 2D de la cuve instrumentée à l'échelle du laboratoire. .	117
Figure V-6 : (a) Sortie des thermocouples du fond de la cuve et (b) extensions des thermocouples collées au passage étanche. ....	117
Figure V-7 : Évolution de la masse nette de la boue B dans la cuve au cours du temps – essai 1. ....	121
Figure V-8 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue B dans la cuve au cours du temps - essai 1. ....	122
Figure V-9 : Évolution de la vitesse de séchage spécifique avec la teneur en eau spécifique. ....	123
Figure V-10 : Évolution de la pression absolue du ciel gazeux dans la cuve au cours du temps – essai 1. ....	124

Figure V-11 : Évolution de la température à l'intérieur de la boue B et dans le ciel gazeux de la cuve au cours du temps – essai 1. ....	126
Figure V-12 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue B dans la cuve au cours du séchage - essai 3. ....	128
Figure V-13 : Évolution des flux massiques lors des essais de séchage 1 et 3 de la boue B à 65 °C et 200 mbar. ....	129
Figure V-14 : Évolution de l'humidité relative à l'intérieur de la cuve au cours du séchage en fonction de la teneur en eau spécifique - essai 3. ....	130
Figure V-15 : Vue supérieure de la boue sèche dans la cuve à la fin du séchage de (a) l'essai 1 et (b) l'essai 3. ....	131
Figure V-16 : Diffractogramme des rayons X de la poudre de sels précipités par efflorescence sur l'échantillon de boue sèche. La darapskite, la thénardite et la nitratine résultent de la cristallisation de sels solubles au niveau de la boue en forme de cake à l'état le plus sec. ....	132
Figure VI-1 : Mécanismes de transfert de chaleur et de masse au sein de la boue avec les directions axiale et radiale du retrait. ....	138
Figure VI-2 : (a) Géométrie de la boue (2D axisymétrique) et (b) son maillage - modèle 1. ....	142
Figure VI-3 : Évolution simulée (ligne pointillée) et expérimentale (ligne continue) de la teneur en eau d'un échantillon de 30 g de boue A séchée à $HR = 46\%$ , 55 °C et 1000 mbar. ....	145
Figure VI-4 : Effet du type de maillage sur les résultats de la simulation à $HR = 46\%$ , 65 °C et 1000 mbar. ....	146
Figure VI-5 : Comparaison de résultats expérimentaux et de simulations (modèle 1) avec et sans retrait de l'évolution de la teneur en eau d'un échantillon de 30 g de boue A séchée à $HR = 46\%$ , 55 °C et 1000 mbar. ....	147
Figure VI-6 : (a) Géométrie de la boue (2D axisymétrique) et (b) son maillage - modèle 2. ....	149
Figure VI-7 : Résultats expérimentaux et simulés de l'évolution de la teneur en eau spécifique pendant le séchage de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale. ....	153
Figure VI-8 : Évolution de la teneur en eau spécifique simulée en fonction de la teneur en eau spécifique expérimentale. ....	154
Figure VI-9 : Evolution de la température expérimentale et simulée au cours du séchage de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale – essai 1. ....	155
Figure VII-1 : Simulation de la distribution de température dans un échantillon de boue A (30 g), en considérant le modèle 1 avec retrait, à (a) $t = 0$ h; (b) $t = 1$ h et (c) $t = 60$ h ( $HR = 46\%$ , 65 °C et pression atmosphérique). ....	158
Figure VII-2 : Évolution de la vitesse de séchage spécifique expérimentale d'un échantillon de 30 g de boue A au cours du temps déterminée à $HR = 46\%$ , 65 °C et pression atmosphérique. ....	158
Figure VII-3 : Simulation de la distribution de la teneur en eau spécifique dans un échantillon de boue A (30 g), en considérant le modèle 1 avec retrait, à (a) $t = 0$ h; (b) $t = 1$ h; (c) $t = 25$ h; (d) $t = 37$ h et (e) $t = 60$ h ( $HR = 46\%$ , 65 °C et pression atmosphérique). ....	161
Figure VII-4 : Simulation de la distribution de la teneur en eau spécifique dans un échantillon de boue A, en considérant le modèle 1 sans retrait à (a) $t = 0$ h; (b) $t = 20$ h et (c) $t = 65$ h ( $HR = 46\%$ , 65 °C et pression atmosphérique). ....	162
Figure VII-5 : Évolutions simulée et expérimentale de la teneur en eau spécifique au cours du séchage d'un échantillon de boue A de 30 g à $HR = 46\%$ , pression atmosphérique et à différentes températures (35, 45, 55 et 65 °C). ....	163
Figure VII-6 : Évolutions simulée et expérimentale de la teneur en eau spécifique au cours du séchage d'un échantillon de boue A de 30 g à $HR = 46\%$ , 65 °C et à différentes pressions absolues (200, 350 et 1000 mbar). ....	164

Figure VII-7 : Simulation (modèle 2) de l'évolution de la température au cours du séchage de la boue B à l'échelle de la maquette, à 200 mbar, 62 °C et $HR = 53\%$ à (a) $t = 0$ j; (b) $t = 2$ j et (c) $t = 84$ j.....	166
Figure VII-8 : Simulation (modèle 2) de l'évolution de la teneur en eau spécifique au cours du séchage de la boue B à l'échelle de la maquette, à 200 mbar, 62 °C et $HR = 53\%$ à (a) $t = 0$ j; (b) $t = 5$ j; (c) $t = 45$ j; (d) $t = 80$ j et (e) $t = 84$ j. ....	169
Figure VII-9 : Évolution de la vitesse de séchage spécifique expérimentale au cours du temps déterminée à $HR = 46\%$ , 65 °C et pression atmosphérique – essai 1.....	169
Figure VII-10 : Effet de la température sur le temps de séchage requis de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale à $HR = 53\%$ et 200 mbar. ....	174
Figure VII-11 : Effet de la pression absolue sur le temps de séchage requis de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale à 62 °C.....	175
Figure VII-12 : Effet des dimensions de la cuve sur le temps de séchage requis de la boue B à 200 mbar, 62 °C et $HR = 53\%$ .....	176
Figure VII-13 : Effet de la conductivité thermique effective sur les résultats de simulation du séchage de la boue B à 200 mbar, 62 °C et $HR = 53\%$ .....	177
Figure VII-14 : Effet de la capacité calorifique sur les résultats de simulation du séchage de la boue B à 200 mbar, 62 °C et $HR = 53\%$ .....	178
Figure VII-15 : Effet du terme de cinétique d'évaporation sur les résultats de simulation du séchage de la boue B à 200 mbar, 62 °C et $HR = 53\%$ .....	179
Figure VII-16 : Simulation de la teneur en eau spécifique au cours du séchage de la boue B ( $X_0 = 380\%$ ) à l'échelle du fût industriel à 65 °C, $HR = 53\%$ et 200 mbar.....	180
Figure VII-17 : Évolution du rapport des volumes simulé au cours du temps à l'échelle du fût industriel.....	181
Figure 1 : Organigramme des étapes du traitement de l'image. ....	190
Figure 2 : Sections transversales 2D d'un échantillon humide (a) à l'image initiale, (b) après premier seuillage, (c) après deuxième seuillage, (d) après détermination du cylindre elliptique, (e) après transformation de fermeture, (f) après élimination des vides et (g) après transformation d'ouverture. ....	190
Figure 3 : Méthode de détermination de la hauteur moyenne par 'Bounding box'.....	192

## Liste des Tableaux

Tableau III-1 : Composition chimique de la boue A et de la boue B sur une base sèche.....	54
Tableau III-2 : Application d'équations empiriques pour modéliser les isothermes de sorption de l'eau. ....	72
Tableau III-3 : Conditions initiales et aux limites du code numérique.....	74
Tableau IV-1 : Estimation des coefficients A et B et des paramètres statistiques pour les quatre modèles des isothermes de désorption de la boue A à 65 °C.....	103
Tableau V-1 : Équations de calibrage des signaux de sortie des capteurs.....	118
Tableau VI-1 : Directions et amplitude des déplacements radiaux et axiaux.....	143
Tableau VI-2 : Conditions initiales et aux limites du modèle thermo-hydro-mécanique (modèle 1).....	144
Tableau VI-3 : Conditions opératoires des essais de séchage expérimentaux.....	145
Tableau VI-4 : Paramètres d'entrée du modèle de séchage de la boue à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2).....	150
Tableau VI-5 : Propriétés thermo-physiques des parois métalliques et du ciel gazeux.....	151
Tableau VI-6 : Conditions initiales du modèle de séchage de la boue à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2).....	151
Tableau VI-7 : Conditions aux limites du modèle de séchage de la boue à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2).....	152
Tableau 1 : Évolution de la conductivité thermique effective mesurée sur la boue A en fonction de la teneur en eau. ....	193

## Liste des Symboles

A	Paramètres du modèle de sorption	(-)
A	Section transversale du cylindre	(m <sup>2</sup> )
A <sub>0</sub>	Section transversale initiale du cylindre	(m <sup>2</sup> )
A <sub>1</sub>	Constante empirique dans l'équation d'Antoine	(-)
A <sub>top</sub>	Surface supérieure	(m <sup>2</sup> )
A <sub>side</sub>	Surface latérale	(m <sup>2</sup> )
a <sub>i1</sub>	Coefficient empirique du soluté 'i'	(-)
a <sub>i2</sub>	Coefficient empirique du soluté 'i'	(-)
a <sub>i3</sub>	Coefficient empirique du soluté 'i'	(-)
a <sub>w</sub>	Activité d'eau	(-)
a <sub>we</sub>	Activité d'eau à l'équilibre	(-)
B	Paramètre du modèle de sorption	(-)
B <sub>1</sub>	Constante empirique dans l'équation d'Antoine	(K)
C	Concentration	(kg. m <sup>-3</sup> )
C <sub>1</sub>	Constante empirique dans l'équation d'Antoine	(K)
C <sub>a</sub>	Concentration en air	(kg. m <sup>-3</sup> )
C <sub>b</sub>	Concentration en eau liée	(kg. m <sup>-3</sup> )
C <sub>f</sub>	Concentration en eau libre	(kg. m <sup>-3</sup> )
C <sub>v</sub>	Concentration en vapeur d'eau	(kg. m <sup>-3</sup> )
c <sub>p</sub>	Capacité calorifique	(J. K <sup>-1</sup> . g <sup>-1</sup> )
c <sub>pi</sub>	Capacité calorifique du soluté 'i'	(J. K <sup>-1</sup> . g <sup>-1</sup> )
c <sub>ps</sub>	Capacité calorifique du solide	(J. K <sup>-1</sup> . g <sup>-1</sup> )
c <sub>pw</sub>	Capacité calorifique de l'eau	(J. K <sup>-1</sup> . g <sup>-1</sup> )
d	Diamètre	(m)
d <sub>0</sub>	Diamètre initial	(m)
D <sub>0</sub>	Diffusivité d'eau apparente initiale	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
D <sub>app</sub>	Diffusivité d'eau apparente	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
D <sub>b</sub>	Coefficient de diffusion de l'eau liée	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
D <sub>ev</sub>	Coefficient de diffusion effectif de la vapeur d'eau	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
D <sub>v-a</sub>	Coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans un mélange de gaz	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
Dt	Temps de séchage requis	(s)
d <sub>eq</sub>	Diamètre équivalent	(m)
e	Distance entre la surface de la boue et le capteur	(m)
E	Pourcentage d'erreur relatif moyen	(%)
f	Coefficient de pondération	(-)
g	Accélération gravitationnelle	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
GS <sub>pot</sub>	Niveau de gris du pot	(-)
GS <sub>wetsludge</sub>	Niveau de gris de la boue humide	(-)
h	Hauteur	(m)
h <sub>0</sub>	Hauteur initiale	(m)
h <sub>ave</sub>	Hauteur moyenne	(m)
HF	Flux thermique du matériau	(W)
HF <sub>b</sub>	Flux thermique de la référence	(W)
HF <sub>row</sub>	Flux thermique fourni	(W)
I	Intensité du faisceau de rayons X incident	(-)
I <sub>0</sub>	Intensité du faisceau de rayons X transmis	(-)
K <sub>eff</sub>	Conductivité thermique effective	(W. m <sup>-1</sup> . K <sup>-1</sup> )
K <sub>g</sub>	Perméabilité de la phase gazeuse	(m <sup>2</sup> )
K <sub>i</sub>	Conductivité thermique de l'élément 'i'	(W. m <sup>-1</sup> . K <sup>-1</sup> )
K <sub>l</sub>	Perméabilité de l'eau liquide	(m <sup>2</sup> )
K <sub>vap</sub>	Terme de cinétique d'évaporation	(s <sup>-1</sup> )
L	Épaisseur	(m)
l	Longueur du chemin optique	(m)
l <sub>dry sludge</sub>	Longueur du chemin optique dans la boue sèche	(m)
l <sub>liquid</sub>	Longueur du chemin optique dans le liquide	(m)
l <sub>pot</sub>	Longueur du chemin optique dans le pot	(m)

$l_{wet\ sludge}$	Longueur du chemin optique dans la boue humide	(m)
$M$	Masse molaire de l'eau	(g. mol <sup>-1</sup> )
$\dot{m}$	Taux d'évaporation	(kg. s <sup>-1</sup> . m <sup>-3</sup> )
$m_0$	Masse initiale	(kg)
$m_d$	Masse sèche	(kg)
$m_e$	Masse d'équilibre	(kg)
$m_t$	Masse totale	(kg)
$m_{t0}$	Masse totale initiale	(kg)
$m_w$	Masse d'eau	(kg)
$N$	Nombre de points dans l'ensemble	(-)
$\dot{n}_{av}$	Flux massique d'évaporation moyen	(kg. s <sup>-1</sup> )
$P$	Pression	(mbar)
$P_{abs}$	Pression absolue	(mbar)
$P_c$	Pression capillaire	(mbar)
$P_{exp,i}$	Valeur expérimentale du ième point	(unit)
$P_G$	Pression de vapeur dans l'air ambiant	(mbar)
$P_l$	Pression de l'eau liquide	(mbar)
$P_{pre,i}$	Valeur prévue du ième point	(unit)
$P_{sat}$	Pression de vapeur saturante	(mbar)
$P_{vap}$	Pression de vapeur en surface	(mbar)
$R$	Rayon	(m)
$R_0$	Rayon initial	(m)
$R_{gas}$	Constante des gaz parfaits	(J. mol <sup>-1</sup> . K <sup>-1</sup> )
$r$	Rayon du cylindre creux	(m)
$r_1$	Rayon intérieur du cylindre creux	(m)
$r_2$	Rayon extérieur du cylindre creux	(m)
$HR$	Humidité relative	(%)
$R^2$	Coefficient de détermination	(-)
$RMSE$	Erreur quadratique moyenne	(-)
$S$	Signal de sortie	(mA) ou (V)
$T$	Température	(°C)
$t$	Temps	(s)
$t_{end}$	Temps final	
$T_0$	Température initiale	(°C)
$T_b$	Température du bulbe humide	(°C)
$T_{gas\ mixture}$	Température dans le mélange gazeux	(°C)
$T_h$	Température extérieure chaude	(°C)
$T_{wall}$	Température des parois métalliques	(°C)
$V$	Volume de la boue	(m <sup>3</sup> )
$V_0$	Volume initial	(m <sup>3</sup> )
$V_{bulk}$	Volume apparent	(m <sup>3</sup> )
$V_f$	Volume final	(m <sup>3</sup> )
$V_{oil}$	Volume d'huile	(m <sup>3</sup> )
$v_{side}$	Flux d'évaporation de la surface latérale	(m. s <sup>-1</sup> )
$v_{top}$	Flux d'évaporation de la surface supérieure	(m. s <sup>-1</sup> )
$w_{drysludge}$	Fraction massique de la boue sèche	(%)
$w_i$	Fraction massique du soluté 'i'	(%)
$w_{liquid}$	Fraction massique du liquide	(%)
$w_s$	Fraction massique du solide	(%)
$w_w$	Fraction massique de l'eau	(%)
$X$	Teneur en eau	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X(i,j)$	Teneur en eau locale	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_0$	Teneur en eau initiale	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_{cr}$	Teneur en eau critique	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_{cr1}$	Première teneur en eau critique	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_{cr2}$	Deuxième teneur en eau critique	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_e$	Teneur en eau à l'équilibre	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_{exp}$	Teneur en eau expérimentale	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$X_{sim}$	Teneur en eau simulée	(kg eau. kg <sup>-1</sup> solide)
$x$	Coordonnées axiales	(m)

$x_0$	Distance à la surface	(m)
<b>Symboles grecs</b>		
$\alpha$	Coefficient empirique du soluté 'i'	(-)
$\beta$	Coefficient de retrait	(-)
$\varepsilon$	Porosité	(-)
$\Delta H_{vap}$	Chaleur latente d'évaporation	(J. kg <sup>-1</sup> )
$\Delta t$	Pas de temps	(s)
$\Delta x$	Pas d'espace	(m)
$\vartheta_{drysludge}$	Fraction volumique de la boue sèche	(-)
$\vartheta_{liquid}$ ou $\vartheta_L$	Fraction volumique liquide	(-)
$\vartheta_G$	Fraction volumique du gaz	(-)
$\vartheta_{G0}$	Fraction volumique initiale du gaz	(-)
$\vartheta_S$	Fraction volumique solide	(-)
$\vartheta_{S0}$	Fraction volumique initiale du solide	(-)
$\mu$	Coefficient d'atténuation massique	(m <sup>2</sup> . kg <sup>-1</sup> )
$\mu_{liquid}$	Coefficient d'atténuation massique du liquide	(m <sup>2</sup> . kg <sup>-1</sup> )
$\mu_{pot}$	Coefficient d'atténuation massique du pot	(m <sup>2</sup> . kg <sup>-1</sup> )
$\mu_{dry sludge}$	Coefficient d'atténuation de la boue sèche	(m <sup>2</sup> . kg <sup>-1</sup> )
$\mu_{wet sludge}$	Coefficient d'atténuation massique de la boue humide	(m <sup>2</sup> . kg <sup>-1</sup> )
$\mu_{solid}$	Coefficient d'atténuation massique du solide	(m <sup>2</sup> . kg <sup>-1</sup> )
$Mu_l$	Viscosité dynamique de l'eau liquide	(kg. m <sup>-1</sup> . s <sup>-1</sup> )
$Mu_g$	Viscosité dynamique de la phase gazeuse	(kg. m <sup>-1</sup> . s <sup>-1</sup> )
$v_a$	Vitesse de l'air	(m. s <sup>-1</sup> )
$v_b$	Vitesse de l'eau liée	(m. s <sup>-1</sup> )
$v_f$	Vitesse de l'eau libre	(m. s <sup>-1</sup> )
$v_v$	Vitesse de la vapeur d'eau	(m. s <sup>-1</sup> )
$\rho$	Masse volumique	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_0$	Masse volumique apparente initiale de la boue	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_i$	Masse volumique de l'élément 'i'	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{app}$	Masse volumique apparente de la boue	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{dry sludge}$	Masse volumique de la boue sèche	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_g$	Masse volumique de la phase gazeuse	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_L$	Masse volumique de l'eau liquide	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{liquid}$	Masse volumique du liquide	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{dry sludge}$	Masse volumique de la boue sèche	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{oil}$	Masse volumique de l'huile	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{pot}$	Masse volumique du pot	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_S$	Masse volumique du solide	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{Sludge, reel}$	Masse volumique réelle de la boue	(kg. m <sup>-3</sup> )
$\rho_{wet sludge}$	Masse volumique de la boue humide	(kg. m <sup>-3</sup> )



## I. Introduction

Les déchets radioactifs sont un sous-produit des réacteurs nucléaires, des usines de traitement du combustible, des hôpitaux et des installations de recherche... Ils sont également générés lors du déclassement et du démantèlement des réacteurs nucléaires et d'autres installations nucléaires. Afin de préserver la santé humaine et de minimiser l'impact sur l'environnement, ils doivent être conditionnés, stabilisés puis stockés.

Dans ce travail, nous nous intéressons au conditionnement d'un type de boue industrielle radioactive résultant d'un processus de coprécipitation. Les installations de l'usine UP2-400 situées à *La Hague* de l'industrie nucléaire '*Orano*' (anciennement '*AREVA*') ont été consacrées au recyclage du combustible irradié de 1966 à 1997. La station de traitement des effluents '*STE2*' a assuré le traitement des effluents de faible et moyenne activité produits par les installations de l'usine UP2-400. Le principe du traitement des effluents liquides consiste à les décontaminer par l'ajout de réactifs spécifiques conduisant à la séparation par coprécipitation chimique des radionucléides présents dans l'effluent. Les boues ainsi produites par coprécipitation (environ 9300 m<sup>3</sup> aujourd'hui) sont transférées dans des silos pour y être stockées. Les sels présents dans ces boues sont répartis, selon l'opérateur, en 80 % de sels insolubles (majoritairement de sulfate) et 20 % de sels solubles.

Initialement, *Orano* avait choisi un procédé de bitumage des boues pour conditionner ces déchets. Des campagnes d'essais de reprise et de bitumage<sup>1</sup> des boues ont été réalisées entre 2002 et 2007, avec la production de 340 colis bitumés. L'enrobage bitumineux était assuré par un procédé de bitumage par évaporation dans une extrudeuse. L'utilisation de celle-ci permet d'obtenir un mélange homogène de boues et de bitume, qui constitue la matrice de confinement. Cette matrice a été choisie pour ses propriétés de confinement sur le long terme. Cependant, en

---

<sup>1</sup> Le procédé de bitumage consiste à mélanger les boues et le bitume liquide. Le produit ainsi obtenu, une fois déshydraté, est coulé dans un conteneur métallique puis refroidi jusqu'à l'obtention d'un solide.

2008, les autorités de sûreté françaises ont déclaré que le procédé de bitumage des boues ‘*STE2*’ n’était pas conforme aux exigences de sûreté en cours d’exploitation (risque d’incendie) et *Orano* a dû trouver un procédé de conditionnement répondant à ces exigences. Suite à cette interdiction, *Orano* a étudié un second procédé pour sécher les boues à l’aide d’un sécheur à couche mince, pour ensuite les compacter en forme de pastilles. En 2016, ce scénario de conditionnement a été abandonné face aux difficultés de la mise en place d’un processus aussi complexe dans les bâtiments existants.

Suite à l’abandon de ce procédé, une recherche de procédés alternatifs a été lancée en 2016. L’une des solutions envisagées, pour le traitement et le conditionnement des boues en vue de la conception d’un colis final, est un procédé avancé de séchage *in situ*. Les avantages du séchage des boues sont : l’obtention d’une siccité réduite au niveau des boues, et donc la limitation de la production d’hydrogène par radiolyse à l’intérieur du colis, la réduction du volume des boues, et la limitation des risques de corrosion. L’objectif est de réduire le volume de la boue et de la densifier pour obtenir une boue stable. Le retour d’expérience d’*Orano* sur les études de conditionnement des emballages montre que l’eau est un dénominateur commun des problèmes liés à l’inertage chimique des boues. Le principe est de chauffer sous vide le fût contenant la boue afin d’éliminer l’eau résiduelle (Figure I-1). L’objectif final est de conditionner la boue sous une forme stable afin de répondre aux spécifications inhérentes au stockage à long terme.

Ce procédé de séchage est au cœur du travail de thèse, dont l’objectif est de comprendre les mécanismes de séchage des déchets de ce type de boues de coprécipitation, comme les ‘*STE2*’, puis de les modéliser pour prédire leur comportement au cours du séchage. Cela implique d’étudier le comportement des boues pendant le séchage et l’élimination de l’eau, afin de vérifier la possibilité d’obtenir une boue stable et homogène, exempte d’eau, sous forme de cake.

Dans ce contexte, il est essentiel de fournir des éléments permettant de définir le temps de séchage au-delà duquel une faible siccité sera atteinte. Pour prédire le comportement des boues pendant l'élimination de l'eau, une modélisation numérique est réalisée à l'aide de COMSOL-Multiphysics 3.5a. À cette fin, les mécanismes impliqués pendant le séchage sont étudiés (Figure I-1).

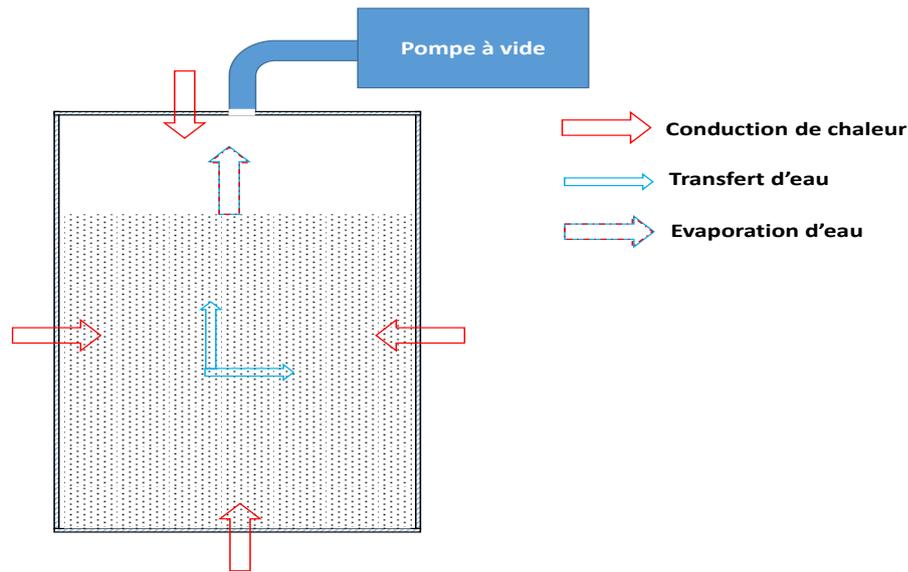


Figure I-1 : Schéma conceptuel du processus de séchage étudié.

Le travail de thèse est réalisé au laboratoire (*L3MR*) au sein du 'CEA - Commissariat à l'énergie nucléaire et aux énergies alternatives', en partenariat avec les laboratoires (*CETHIL* et *DEEP*) de l'*INSA Lyon*. Il s'inscrit dans le cadre d'un projet mené par *Orano*, visant à développer un emballage confiné optimisé pour les déchets réactifs par séchage avancé *in situ*. L'approche adoptée dans cette étude est présentée dans la Figure I-2.

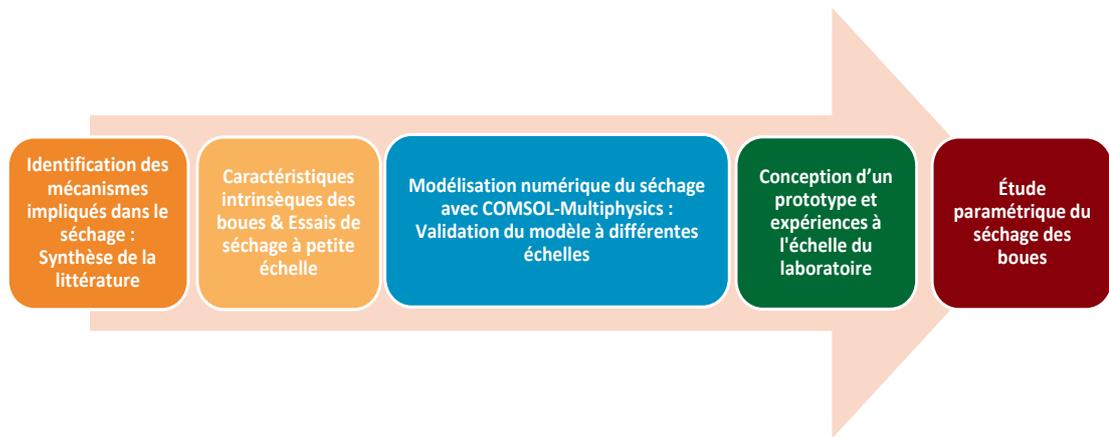


Figure I-2 : Les différentes étapes de l'approche adoptée dans le cadre du travail de thèse.

Les mécanismes identifiés sont des transferts de chaleur et de masse, ainsi que des phénomènes de retrait qui se produisent simultanément dans le milieu poreux constitué par la boue. Le transfert de masse a lieu principalement par diffusion/capillarité et dépend des gradients de température et de teneur en eau du milieu poreux de la boue. Le transport de l'eau à l'intérieur du milieu poreux se fait par diffusion/capillarité (eau liquide) et par diffusion moléculaire/Knudsen (vapeur d'eau). La chaleur est fournie au fût à travers les parois à partir de l'environnement extérieur chaud maintenu à une température constante. Le transfert de chaleur a lieu de la zone extérieure chaude vers l'intérieur de la boue par conduction thermique avec une consommation d'énergie due à l'évaporation de l'eau. Des modifications structurales peuvent se produire pendant le séchage des boues, ce qui affecte le transfert de masse à l'intérieur du matériau. Cela inclut le retrait, résultant de la réduction du volume de la matière humide chauffée en raison de l'évaporation de l'eau.

Les mécanismes de séchage sont ensuite exprimés par des lois et des équations mathématiques pour modéliser le procédé de séchage. Afin de simplifier la modélisation du transport de l'eau, le flux d'eau non isotherme dans les pores non saturés de la boue est décrit par l'équation de Richard, exprimée avec un coefficient de diffusion d'eau apparent. La conduction thermique dans le milieu poreux de la boue est quant à elle décrite par la loi de Fourier. Plusieurs équations de couplage sont utilisées pour résoudre numériquement le

problème. L'ensemble d'équations choisi contient divers paramètres d'entrée qui sont des caractéristiques de la boue étudiée.

Une étude préliminaire pour déterminer les caractéristiques intrinsèques des boues est ensuite réalisée au *CEA/DES/ISAS/DPC/SECR/L3MR* sur de petits échantillons afin d'acquérir les données d'entrée du modèle numérique. Pour effectuer ces mesures, une boue non radioactive a été synthétisée pour simuler la boue industrielle radioactive. Les propriétés thermo-physiques et mécaniques des boues industrielles étudiées, telles que le coefficient de retrait, la masse volumique apparente, l'activité d'eau, la diffusivité apparente d'eau, la conductivité thermique effective, la capacité calorifique et le terme de cinétique d'évaporation, sont déterminées expérimentalement et mises en équations.

Le développement du modèle numérique est abordé en plusieurs séquences afin de valider l'ensemble des équations choisies. Dans un premier temps, un modèle thermo-hydro-mécanique à l'échelle d'un petit échantillon de boue (30 g) est développé. Ce modèle intègre tous les mécanismes mentionnés qui ont lieu pendant le séchage. Le modèle est ensuite validé à partir des données expérimentales spécifiques acquises sur les petits échantillons. La deuxième étape vise à appliquer ces équations couplées à une géométrie intermédiaire et homothétique du fût industriel. L'objectif du modèle de séchage à géométrie intermédiaire est d'évaluer l'impact du changement d'échelle sur la précision de la simulation. Pour cela, une maquette expérimentale instrumentée à l'échelle du laboratoire est conçue et réalisée au *CEA/DES/ISAS/DPC/SECR/L3MR*. La maquette à l'échelle intermédiaire contribue à l'acquisition de données expérimentales afin de valider le modèle numérique de séchage à la même échelle. Suite à la validation du modèle à l'échelle de la maquette, une étude paramétrique et une étude de sensibilité sont réalisées. La géométrie du modèle est ensuite élargie à celle du fût industriel, afin de simuler le séchage de boue dans le fût. Cette étape est conditionnée par la vérification d'homogénéité du comportement de la boue, indépendamment

de l'échelle étudiée. Vu que, le comportement homogène de la boue à différentes échelles justifie la possibilité de la modélisation du séchage à grande échelle en partant d'une plus petite échelle. C'est pour cela, dans ce travail, nous nous intéressons à démontrer expérimentalement ce comportement homogène au cours du séchage.

Dans le chapitre II, une analyse des courbes de séchage théoriques et de l'évolution de la température pendant le séchage est détaillée. Les mécanismes référencés qui se produisent au cours du séchage d'un milieu poreux, comme les boues, sont ensuite exposés. Des équations mathématiques sont également associées aux mécanismes décrits afin de simuler le séchage des boues.

Le chapitre III décrit les matériaux et les méthodes utilisés pour la caractérisation des boues. Ce travail vise à déterminer les principales propriétés thermo-physiques ainsi que le coefficient de retrait des boues. La conductivité thermique effective, la capacité calorifique, le phénomène de retrait, la masse volumique apparente, la diffusivité de l'eau apparente, l'activité d'eau sont ensuite déterminés en fonction de la teneur en eau et de la température. Les cinétiques des petits échantillons sont également déterminées en fonction de la teneur en eau, de la température, de l'humidité relative et de la pression. Certaines cinétiques sont utilisées pour déterminer des paramètres d'entrée spécifiques, d'autres sont dédiées à la validation du modèle numérique à petite échelle.

Le chapitre IV présente les résultats expérimentaux obtenus pour quantifier les paramètres intrinsèques des boues, nécessaires à la simulation du séchage. Leurs évolutions en fonction de la teneur en eau, de la température et de la pression sont discutées.

Dans le chapitre V, la maquette expérimentale à l'échelle intermédiaire est décrite. Ensuite, les résultats expérimentaux obtenus avec la maquette sont présentés. L'évolution de la teneur en eau et de la température au cours du temps est obtenue grâce à un ensemble de capteurs insérés dans la maquette et à une station d'acquisition/traitement des données. Trois

essais sont effectués au niveau de la maquette. Les résultats du premier essai sont utilisés pour valider modèle de séchage à l'échelle de la maquette expérimentale. Alors que les résultats de deux autres tests sont utilisés pour déterminer certains paramètres d'entrée pour le modèle de séchage à l'échelle de la maquette (humidité relative, terme de cinétique d'évaporation).

Dans le chapitre VI, la modélisation numérique du procédé de séchage est exposée. La modélisation à deux échelles différentes est présentée et validée par des données expérimentales acquises spécifiquement dans le cadre de ce travail. Le phénomène de retrait pris en compte lors de la modélisation est également évalué.

Dans le chapitre VII, les résultats des simulations numériques sont interprétés. Les hypothèses de modélisation sont critiquées et le comportement homogène de la boue à différentes échelles est vérifié. Une étude paramétrique sur les conditions opératoires ainsi que sur les dimensions de la cuve de la maquette est réalisée. Une étude d'analyse de sensibilité de différents paramètres est également examinée.

Dans le dernier chapitre (chapitre VIII), une conclusion sur l'ensemble du travail est donnée. De nouvelles perspectives pour l'amélioration de la modélisation numérique sont également proposées.



## II. Notions générales de séchage

Le séchage est un procédé de transfert de masse qui consiste à éliminer partiellement ou totalement le solvant d'un corps humide par évaporation. Dans la plupart des cas, le solvant extrait est de l'eau. Ce processus comprend des phénomènes simultanés de transfert de masse et de chaleur, ainsi que des transformations physiques ou chimiques. Les modifications mécaniques qui peuvent se produire comprennent les changements géométriques (retrait) et la fissuration. Dans certains cas, il peut y avoir des réactions chimiques, entraînant des changements dans les propriétés du produit solide et conduisant par exemple, à une cristallisation de produits secondaires.

Afin de comprendre le comportement des boues pendant le séchage, il est important de rechercher quelles sont les caractéristiques de l'eau vis-à-vis du solide, ainsi que les mécanismes de transfert et les changements physico-chimiques qui peuvent se produire. L'activité de l'eau est un paramètre clé dans le processus de séchage d'un milieu poreux tel que la boue [1]. L'activité de l'eau dans un milieu poreux humide comme les boues dépend de sa teneur en eau, de sa composition en sel dissous ainsi que des interactions microscopiques entre l'eau et la phase solide du milieu poreux [2]. Il est donc crucial de déterminer son évolution en fonction de la teneur en eau. De plus, les mécanismes de transfert de masse et de chaleur doivent être étudiés afin de décrire avec précision le processus de séchage (Figure II-1). Le transport de l'eau à l'intérieur du milieu poreux se fait principalement par diffusion/capillarité (eau liquide) et par diffusion moléculaire/Knudsen (vapeur d'eau). Afin de simplifier la modélisation du transport de l'eau, le flux d'eau non isotherme dans les pores non saturés d'un milieu poreux (comme la boue) est décrit par l'équation de Richard, exprimée avec un coefficient de diffusion d'eau apparent. Selon le procédé de séchage choisi dans cette étude (séchage *in situ* dans un fût), le séchage est conductif et implique donc un transfert de chaleur par conduction à travers les parois à partir de l'environnement extérieur chaud maintenu à une température constante. Le transfert

de chaleur a lieu de la zone chaude extérieure vers l'intérieur du milieu poreux humide, chauffé par conduction avec une consommation d'énergie due à l'évaporation de l'eau. De nombreuses études ont montré que le milieu poreux humide est soumis à une réduction de volume due à l'évaporation de l'eau pendant le séchage [3–6]. Il en résulte des changements dans l'adhésion des particules et leur comportement viscoélastique, ce qui affecte les phénomènes de transfert de masse [7, 8]. Il est donc important d'étudier le phénomène de retrait et d'examiner son effet sur l'ensemble du processus de séchage.

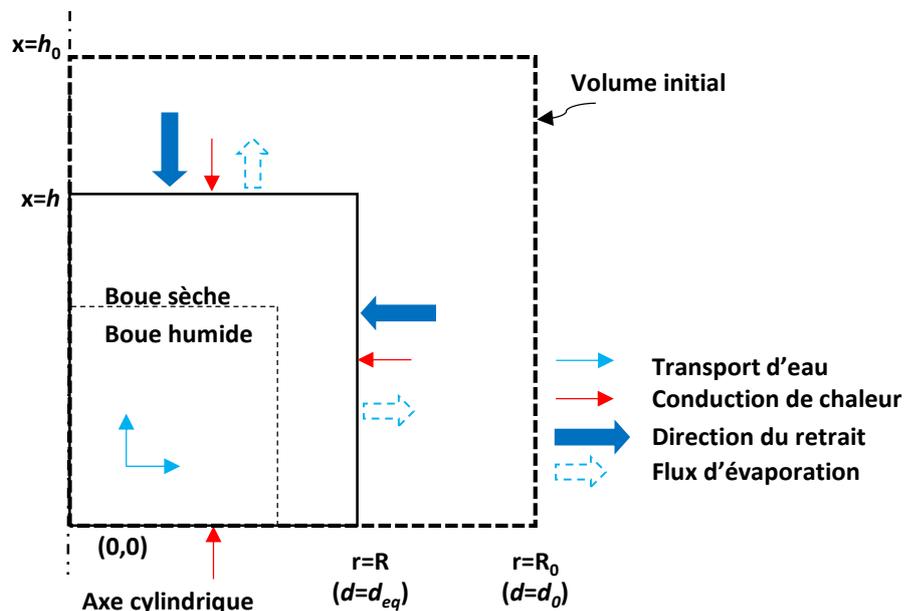


Figure II-1 : Mécanismes de transfert de chaleur et de masse au sein de la boue avec retrait suivant les directions axiale et radiale.

Dans ce chapitre, les différentes formes que peut prendre l'eau dans un milieu poreux seront présentés. Ensuite, l'activité de l'eau et son évolution en fonction de l'humidité relative, représentée par les isothermes de sorption seront discutées en détail. Dans une troisième partie, les courbes de séchage typiques et l'évolution de la température au cours du séchage seront décrites. Les mécanismes référencés qui se produisent dans le milieu poreux (comme les boues) lors de son séchage, seront ensuite exposés. Des équations mathématiques sont également associées aux mécanismes décrits afin de modéliser le séchage des boues.

## 1. Différentes formes de l'eau dans un matériau humide

L'eau présente dans un milieu poreux humide tel que la boue peut se trouver sous différentes formes : eau interstitielle, eau liée, eau de constitution et vapeur d'eau (Figure II-2). Ces formes (à l'exception de la vapeur d'eau) se distinguent essentiellement par l'intensité des forces liant l'eau aux surfaces solides. L'eau liée est divisée en eau physisorbée et en eau chimisorbée. L'eau interstitielle est divisée en eau libre et en eau capillaire.

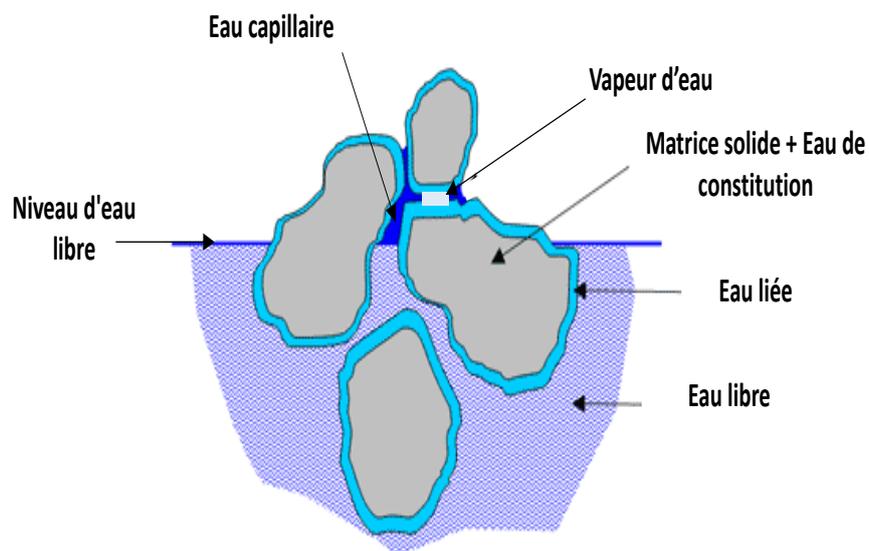


Figure II-2 : Différentes formes de l'eau dans un milieu poreux humide, adapté de [9].

- L'eau libre existe lorsque l'eau interstitielle remplit la macroporosité du milieu poreux. L'eau libre est soumise aux lois de l'écoulement hydraulique. Les forces qui lient cette eau aux particules solides sont trop faibles pour s'opposer à l'action de la gravité, ce qui permet de l'éliminer par simple drainage ou déshydratation mécanique [10, 11].
- L'eau capillaire est l'eau qui est retenue par les pores les plus fins au-dessus du niveau de l'eau libre. L'eau capillaire se fixe en raison de sa tension superficielle élevée et de ses forces d'adhésion liquide-solide. Elle reste dans les pores, malgré la gravité.
- L'eau physisorbée forme une couche d'eau extrêmement fine qui recouvre les surfaces solides. Le phénomène d'adsorption physique est basé sur l'interaction de l'adsorbat avec la surface solide. Les molécules d'eau sont orientées par les forces d'attraction moléculaires et

les forces électrostatiques de Van der Waals [12]. L'eau d'adsorption n'est pas éliminée par centrifugation, mais peut être éliminée par traitement thermique.

- L'eau chimisorbée est l'eau qui est fortement adsorbée. Les molécules d'eau dipolaires sont attirées par les effets de surface sur les unités ionisées en couche mince. Ce type d'eau a besoin de plus d'énergie pour être éliminé.
- L'eau de constitution représente l'eau incluse dans la composition chimique et la structure cristalline des minéraux hydratés. Cette fraction d'eau est totalement indisponible, du moins jusqu'à ce que la matière soit altérée. Elle a alors besoin de beaucoup d'énergie pour être libérée.
- La vapeur d'eau est le résultat de l'eau évaporée qui est toujours emprisonnée dans le milieu poreux. La vapeur d'eau migre à l'extérieur du milieu poreux en raison du gradient de pression et des forces motrices de diffusion.

## 2. L'activité de l'eau

Comme défini par G. Scott [13], l'activité de l'eau  $a_w$  d'un produit est le rapport entre la pression partielle de la vapeur d'eau à la surface du produit ( $P_{vap}(T)$ ) et la pression de vapeur saturante ( $P_{sat}(T)$ ). L'activité de l'eau dépend de la teneur en eau et du type d'eau présent dans le produit.

$$a_w(X) = \frac{P_{vap}(T)}{P_{sat}(T)} \quad (\text{II-1})$$

Selon Resnik et al. [14], ces deux pressions dépendent fortement de la température, alors que la dépendance de leur rapport  $P_{vap}(T)/P_{sat}(T)$  avec la température est beaucoup plus faible. De même, ils justifient que l'humidité relative ( $HR$ ) est donnée par le rapport entre la pression de vapeur partielle dans l'air ( $P_G$ ) et la pression de vapeur saturante ( $P_{sat}(T)$ ) :

$$HR = \frac{P_G}{P_{sat}(T)} \quad (\text{II-2})$$

À l'équilibre, l'activité de l'eau du produit est égale à l'humidité relative de l'air ambiant, comme le montre l'équation ci-dessous :

$$a_{we} = \frac{HR}{100} \quad (\text{II-3})$$

L'isotherme de sorption relie la teneur en eau à l'équilibre du solide à l'humidité relative de l'atmosphère à une température donnée. L'activité de l'eau est une caractéristique des interactions microscopiques entre la phase aqueuse et la phase solide dans un milieu poreux humide tel que la boue [15]. Les isothermes de sorption de l'eau renseignent sur l'intensité des liaisons de l'eau à l'échelle macroscopique entre la phase aqueuse et les surfaces solides. Les isothermes de sorption de l'eau décrivent donc le comportement hygroscopique du solide.

Selon le type de matériau, les isothermes peuvent prendre différentes formes. Selon la classification de l'IUPAC (Union internationale de chimie pure et appliquée) [16], il existe six types d'isothermes différents, chacun correspondant à un type d'interaction et de porosité (Figure II-3). Ces isothermes représentent le volume adsorbé en fonction de la pression partielle, comme le montre la Figure II-3.

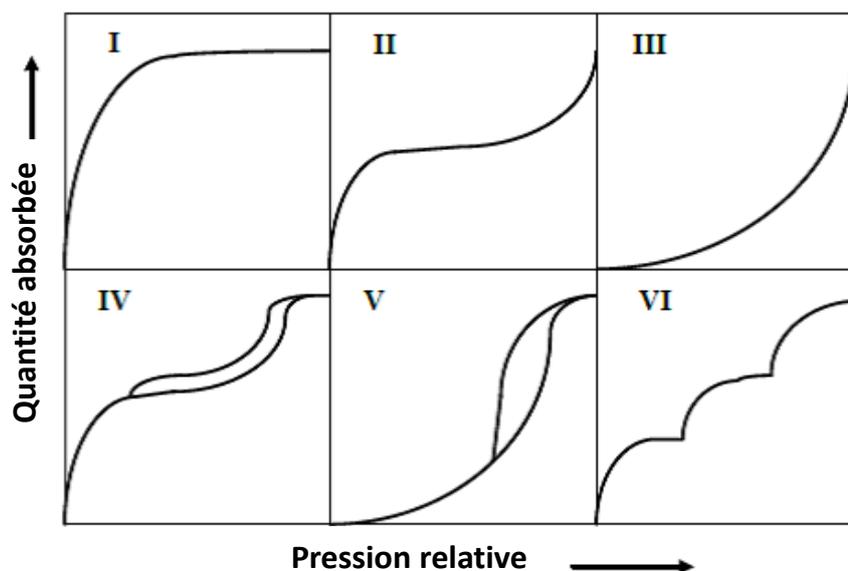


Figure II-3 : Différents types d'isothermes selon la classification de l'IUPAC [16].

Le type I correspond à une adsorption monocouche, connue sous le nom de Langmuir [17]. Les

types II et III sont rencontrés pour les solides macroporeux, tandis que les isothermes de type IV et de type V correspondent aux solides méso-poreux. Les isothermes de type IV et de type V présentent souvent une hystérésis due à la condensation capillaire. L'isotherme de type VI correspond à une adsorption multicouche d'un milieu poreux dans lequel les couches adsorbées se forment les unes après les autres.

Les isothermes d'adsorption/désorption sont généralement divisées en trois zones (Figure II-4). Chaque zone correspond à un mode particulier d'adsorption d'eau sur le produit :

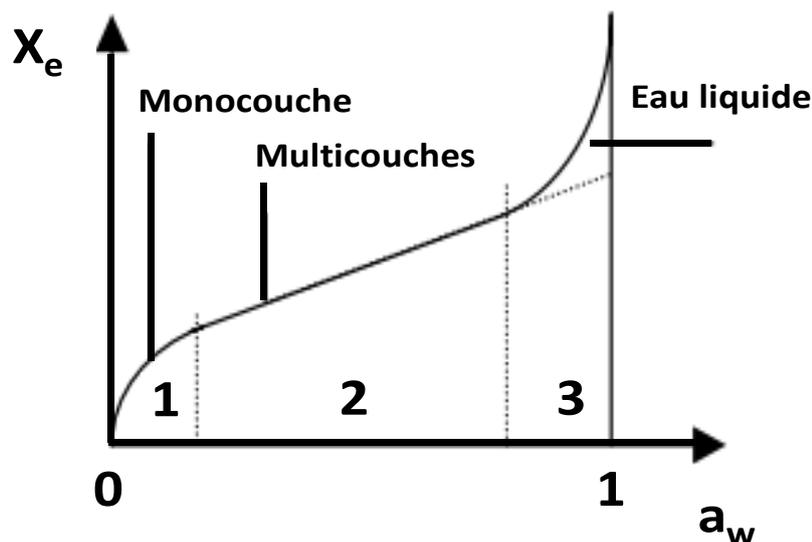


Figure II-4 : Évolution de la teneur en eau à l'équilibre avec l'activité de l'eau, adapté de [18].

- Zone 1 : à de faibles pressions partielles d'eau (faible activité d'eau), une monocouche moléculaire d'eau est progressivement adsorbée sur la surface du solide. L'eau se présente sous une forme rigide en raison des forces de liaison élevées entre les molécules d'eau et la surface (théorie de Langmuir [17]). La zone suivante commence lorsque la surface est entièrement saturée.
- Zone 2 : Il y a une augmentation linéaire de la pente de la courbe aux valeurs intermédiaires de l'activité de l'eau. Cela est dû à la formation d'une deuxième couche de molécules sur la monocouche initiale, suivie d'une adsorption multicouche. L'énergie de liaison est inférieure à celle de la première couche (théorie de Brunauer-Emmett-Teller (BET) [19]).

- Zone 3 : L'eau est présente à l'état liquide dans les pores du matériau à des pressions proches de la saturation. Cette eau constitue une phase continue en raison de la présence d'un film d'eau libre d'une épaisseur suffisante. Son énergie de liaison est très faible (équation de Kelvin [20]).

### 3. Analyse des courbes de séchage

Compte tenu de la complexité des mécanismes impliqués dans le séchage et la diversité des produits, chaque produit a sa propre cinétique de séchage [21]. Par conséquent, la cinétique de séchage est déterminée pour chaque produit, sur la base d'études expérimentales. Dans le cas du séchage thermique, deux types de courbes de séchage peuvent être utilisés pour décrire l'évolution de la cinétique du produit au cours du séchage : la courbe de la teneur en eau spécifique et la courbe de la vitesse de séchage spécifique. L'évolution de la température du matériau soumis au séchage thermique est également décrite dans cette partie.

#### 3.1. Courbe de la teneur en eau spécifique

La teneur en eau moyenne à base sèche  $X$  (% ou  $\text{kg eau} \cdot \text{kg}^{-1}$  solide) du produit est tracée en fonction du temps.  $X$  est obtenu directement en enregistrant la masse au cours du temps et en connaissant la teneur initiale en eau  $X_0$  (ou masse sèche  $m_d$  (kg)) du produit. Cependant, il est courant de travailler avec la teneur en eau spécifique sans dimension normalisée  $X/X_0$  (-) au lieu de la teneur en eau  $X$  comme le montre la Figure II-5. La courbe est divisée en deux parties : la teneur en eau spécifique diminue rapidement et presque linéairement dans la première partie, puis diminue lentement au fur et à mesure du séchage jusqu'à atteindre l'équilibre dans la deuxième partie [22]. Pendant la première phase, le débit d'eau transporté à l'interface est supérieur à celui de l'eau évaporée, conduisant à une accumulation d'eau à cet endroit. Dans la deuxième partie, le transport de l'eau devient plus lent et les conditions aux limites permettent l'évaporation de l'eau vers l'air environnant d'une façon plus importante que celle qui arrive réellement à la surface. Pendant la deuxième partie du séchage, le processus est ralenti et le

séchage est limité par les propriétés du matériau.

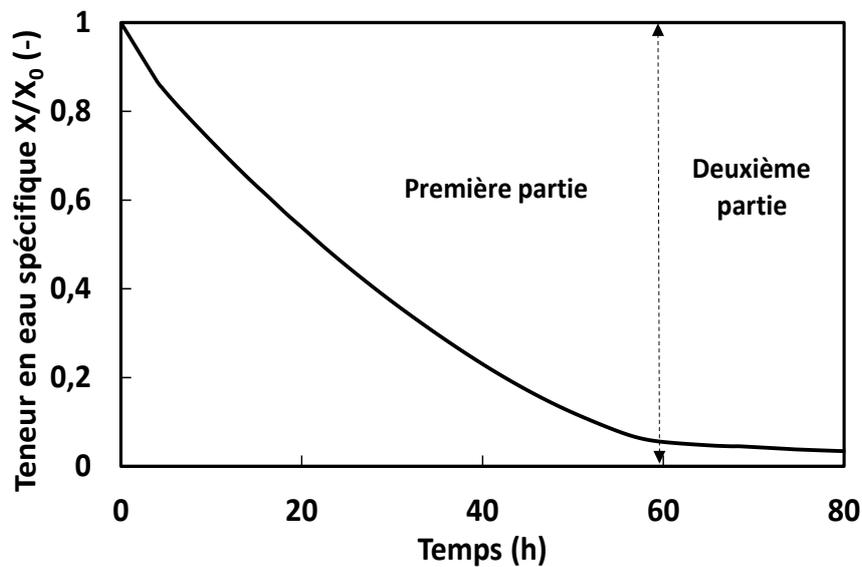


Figure II-5 : Courbe de séchage typique pour des conditions de séchage constantes : tracé de la teneur en eau spécifique en fonction du temps.

### 3.2. Analyse globale de la courbe de vitesse de séchage

La courbe caractéristique de séchage est déterminée en exprimant la variation de la vitesse de séchage spécifique  $d(X/X_0)/dt$  ( $s^{-1}$ ) en fonction du temps ou en fonction de la teneur en eau spécifique  $X/X_0$  (-) (Figure II-6). La courbe typique de la cinétique théorique du séchage permet classiquement de distinguer trois périodes : le préchauffage, la période à vitesse constante et les périodes à vitesse décroissante [21, 23].

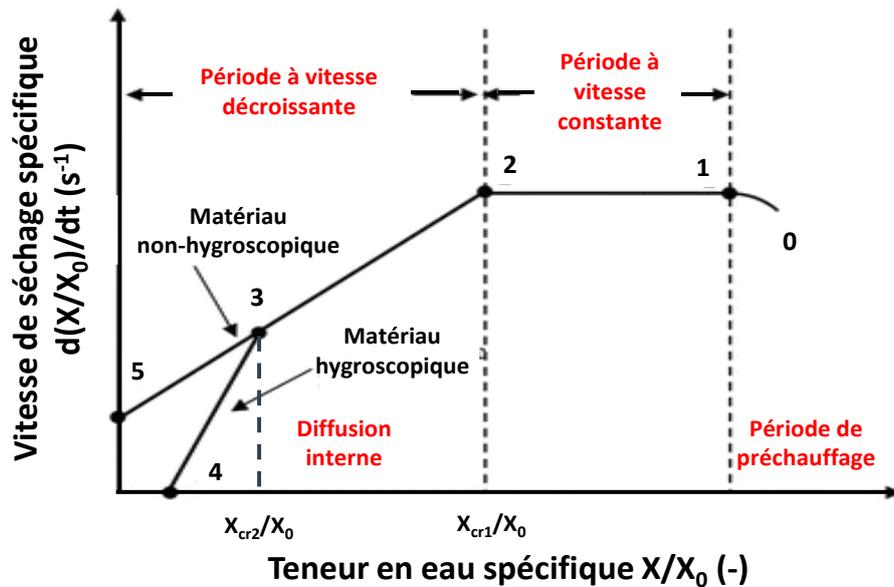


Figure II-6 : Courbe typique de vitesse de séchage spécifique pour des conditions de séchage constantes : tracé de la vitesse de séchage spécifique en fonction de la teneur en eau spécifique.  $X_{cr1}/X_0$  et  $X_{cr2}/X_0$  sont respectivement les teneurs en eau spécifiques auxquelles commencent la première et la deuxième partie de la période à vitesse de séchage décroissante.

### 3.2.1. Période de préchauffage

Pendant la période de préchauffage (augmentation de la vitesse de séchage : zone 0-1), la quantité de chaleur fournie par le milieu environnant au produit contribue à l'augmentation de sa température de surface jusqu'à ce que l'eau libre commence à s'évaporer. La période de préchauffage est généralement courte par rapport au temps de séchage global et ne se produit pas en l'absence d'une différence de température significative entre l'air ambiant et le produit.

### 3.2.2. Période de séchage à vitesse constante

Dans la période de séchage à vitesse constante (zone 1-2), la surface du solide est initialement très humide avec l'existence d'un film continu d'eau. Cette eau est entièrement libre et se comporte indépendamment du solide. Par conséquent, le taux d'évaporation dans les conditions atmosphériques données est indépendant du solide et est essentiellement similaire au taux obtenu à partir d'une surface liquide libre. Dans le cas d'un milieu poreux, la plus grande partie de l'eau évaporée pendant la période à vitesse constante est fournie par l'intérieur du solide. Cette période ne dure que tant que l'eau est fournie à la surface aussi vite qu'elle est évaporée.

Les résistances de transfert se trouvent presque exclusivement dans la couche limite externe. La vitesse de séchage dépend donc principalement des conditions extérieures, c'est-à-dire de l'humidité relative et de la température de l'atmosphère, de la pression et de la surface d'échange exposée au séchage.

### 3.2.3. Période de séchage à vitesse décroissante

Deux modèles sont couramment cités : le modèle 'receding front' et le modèle 'wet surface' [24, 25]. Le premier modèle suppose que le front d'évaporation se déplace vers l'intérieur, tandis que le second modèle suppose que l'évaporation se produit sur la surface partiellement sèche.

#### Modèle 'Receding front'

La première période de décélération (zone 2-3) commence lorsque la surface du matériau en contact avec l'air chaud atteint le seuil hygroscopique (toute l'eau libre a été éliminée de la surface). Le rapport  $X_{cr1}/X_0$  est défini comme la teneur en eau spécifique à laquelle la décélération se produit. Le front de séchage qui se trouvait à la surface migre vers l'intérieur du matériau. Dans cette phase, les différentes résistances internes du matériau aux transferts de chaleur et de masse contrôlent la vitesse de séchage. Ces résistances seront d'autant plus importantes que le front de séchage sera éloigné de la surface externe du matériau [26]. Une fois que l'ensemble du matériau est dans le domaine hygroscopique, c'est-à-dire qu'il ne reste que de l'eau liée, la deuxième phase de décélération commence (à partir d'une valeur de teneur en eau spécifique de  $X_{cr2}/X_0$ ). Le séchage est terminé lorsque le solide a atteint sa teneur en eau d'équilibre dans les conditions opératoires spécifiques (zone 3-4). Si le matériau est non hygroscopique, cette deuxième période n'existe pas : la première zone de décélération se poursuit jusqu'à la fin du séchage (zone 3-5).

#### Modèle 'Wet surface'

Au point 2, il n'y a plus assez d'eau à la surface pour maintenir un film d'eau continu. La surface n'est plus entièrement mouillée et a une teneur en eau spécifique globale  $X_{cr1}/X_0$ . La surface

mouillée diminue continuellement dans cette première période à vitesse décroissante (zone 2-3) jusqu'à ce qu'elle soit entièrement sèche au point 3 [24]. Ensuite, la deuxième période de décroissance commence au point 3 ( $X_{cr2}/X_0$ ). Le front d'évaporation commence à s'éloigner lentement de la surface externe (zone 3-4). L'eau évaporée se déplace à travers les pores du milieu solide jusqu'à l'environnement extérieur. Dans certains cas (matériaux non hygroscopiques), aucune discontinuité nette ne se produit au point 3, et la transition entre des matériaux partiellement humides et complètement secs est si graduelle qu'aucun changement distinct n'est détectable (zone 3-5). La quantité d'eau éliminée au cours de la période à vitesse décroissante peut être relativement faible, mais le temps nécessaire peut être long.

### 3.3. Évolution de la température

L'évolution de la température peut être liée aux différentes périodes de séchage introduites ci-dessus. Au début du séchage, la température à la surface du matériau s'élève de la température ambiante à une valeur de température constante appelée température du bulbe humide  $T_b$ . La valeur de la température du bulbe humide est inférieure à la température de l'atmosphère chaude  $T_h$  et dépend de l'état d'équilibre thermique. L'équilibre thermique résulte de l'équilibre entre la chaleur fournie par l'extérieur au matériau humide et l'énergie absorbée par l'évaporation de l'eau. La température de surface reste égale à la température du bulbe humide  $T_b$  pendant toute la période de séchage à vitesse constante [27] (Figure II-7, courbe 1). Une fois que la vitesse de séchage décroît, l'eau libre commence à disparaître, la température augmente progressivement pour atteindre finalement la température de l'environnement plus chaud  $T_h$ . Au cœur du matériau, la température suit une évolution presque identique. Excepté pendant la période de décélération de la vitesse de séchage, la température augmente moins rapidement au cœur, en raison des résistances de transfert de chaleur du matériau (Figure II-7, courbe 2). En effet, le front de séchage (front d'eau libre) initialement à la surface migre vers l'intérieur du matériau et provoque le gradient de température entre la surface extérieure et le noyau.

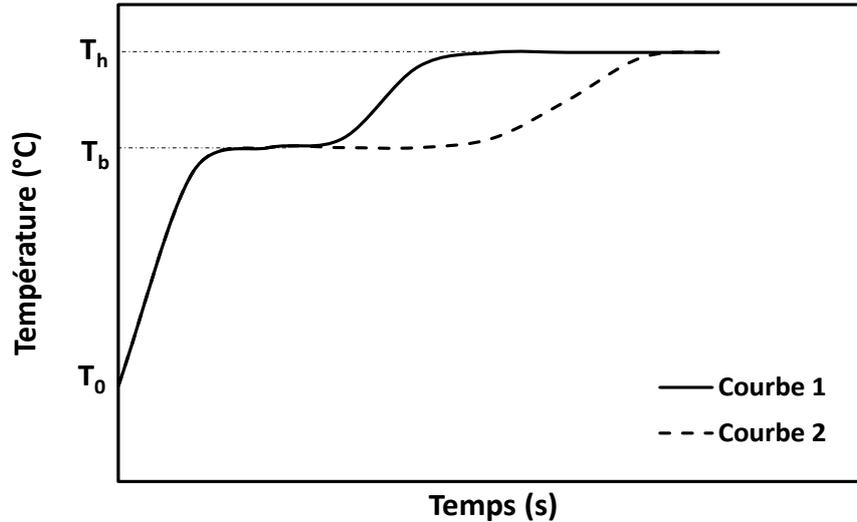


Figure II-7 : Évolution de la température de surface pendant le séchage.

#### 4. Mécanismes référencés pour le séchage des boues

Les mécanismes de séchage impliquent des processus simultanés de transfert de chaleur et de masse, ainsi que des changements physiques (retrait, cristallisation) ou des transformations chimiques. Le séchage résulte de l'évaporation de l'eau initialement à l'état liquide, en fournissant de la chaleur au produit initialement humide. La chaleur peut être fournie par convection (séchateurs directs), par conduction (séchateurs par contact ou séchateurs indirects), par rayonnement. Toutefois, dans ce travail, la méthode de séchage par conduction est utilisée.

##### 4.1. Transfert de masse

Lors du séchage d'un milieu poreux, comme les boues, il est important de prendre en compte de nombreux composants : eau libre (liquide) / capillaire, eau liée, vapeur d'eau et air. Dans un milieu poreux rigide, le volume de l'eau évaporée est entièrement remplacé par une phase gazeuse contenant de la vapeur d'eau et de l'air. La teneur globale en eau du milieu est liée à la somme des concentrations d'eau dans l'eau liée, l'eau libre et la phase vapeur. Les bilans massiques des quatre composants (air, eau libre, vapeur d'eau et eau liée) sont donnés dans les Équations (II-4) et (II-5) :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla \cdot C_a v_a \quad (\text{II-4})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (C_f + C_v + C_b) = -\nabla \cdot (C_f v_f + C_v v_v + C_b v_b) \quad (\text{II-5})$$

Où,  $C_i$  et  $v_i$  désignent respectivement la concentration ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) et la vitesse ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) de la composante  $i$  (' $a$ ' pour l'air, ' $f$ ' pour l'eau libre, ' $v$ ' pour la vapeur d'eau et ' $b$ ' pour l'eau liée).

Afin de développer les Équations (II-4) et (II-5), les relations pour les flux  $C_i v_i$  de chaque composante ' $i$ ' doivent être dérivées sur la base des mécanismes et des forces motrices dominants de chaque composante (Figure II-8). Par conséquent, le modèle construit est appelé "modèle mécaniste".

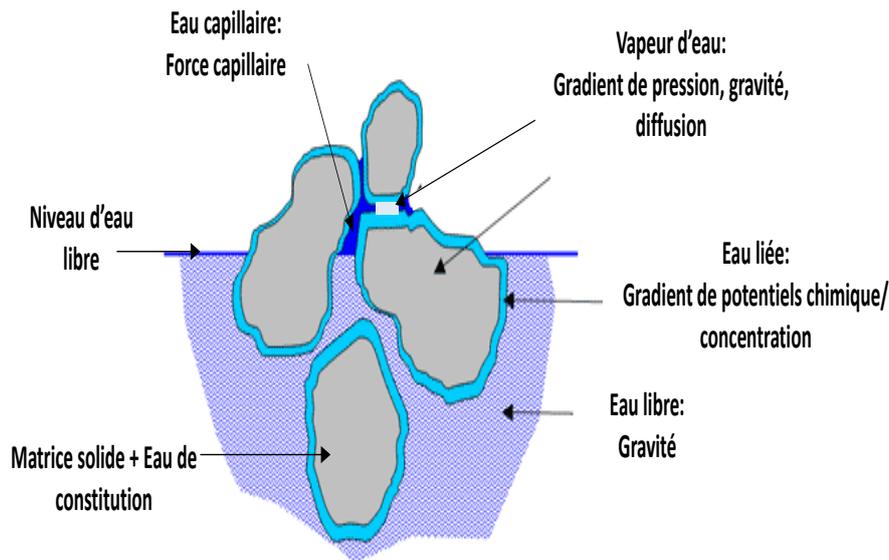


Figure II-8 : Mécanismes de transfert de masse associés à l'état de l'eau pendant le séchage de boue, adapté de [9].

- Eau libre :

Les gradients de pression (force capillaire) et la gravité sont les principaux mécanismes qui entraînent l'eau libre/capillaire dans un milieu poreux. Par conséquent, le transfert d'eau libre/capillaire pourrait être décrit par la loi de Darcy :

$$C_f v_f = -d_w \frac{K_l}{Mu_l} (\nabla P_l - \rho_L g) \quad (\text{II-6})$$

La pression du liquide l'interface  $P_l$ , dans un milieu poreux non saturé, est liée à la pression capillaire  $P_c$  comme suit :

$$P_l = P - P_c \quad (\text{II-7})$$

Où  $P$  est la pression de la phase gazeuse dans les pores. Fondamentalement, la pression capillaire dépend fortement de la teneur en eau et doit être déterminée expérimentalement [28]. De même, la perméabilité du transport d'eau liquide dépend de la teneur en eau et doit être déterminée expérimentalement [29].

- Vapeur d'eau et air :

La vapeur d'eau et l'air présents dans la phase gazeuse sont soumis aux mêmes forces motrices et aux mêmes mécanismes de transport dans les matériaux : le gradient de pression dans la phase gazeuse piégée dans le milieu poreux, la gravité et la diffusion selon la loi de Fick. Équation (II-8) est l'équation pour la vapeur d'eau, celle de l'air pourrait être obtenue en remplaçant simplement les indices 'v' par 'a'..

$$C_v v_v = -\frac{C_v K_g}{\varepsilon Mu_g} (\nabla P - \rho_g g) - D_{ev} \nabla \left( \frac{C_v}{\varepsilon} \right) \quad (\text{II-8})$$

$D_{ev}$  est le coefficient de diffusion effectif de la vapeur dans le mélange gazeux, il est lié au coefficient de diffusion binaire pour le mélange vapeur/air, corrigé avec la porosité et la tortuosité du milieu [30]. De même, la perméabilité du transport en phase gazeuse  $K_g$  dépend de la teneur en eau et doit également être déterminée expérimentalement.

- Eau liée :

Selon diverses références [30–32], les forces motrices du transport de l'eau liée sont les gradients de potentiel chimique, de concentration de vapeur et de concentration d'eau liée. Perre et al. [33] ont décrit le transport de l'eau liée comme suit :

$$C_b v_b = -D_b \nabla C_b \quad (\text{II-9})$$

Le coefficient de diffusion de l'eau liée  $D_b$  dépend également de la teneur en eau et doit être déterminé expérimentalement.

L'utilisation du modèle mécaniste présente de nombreux inconvénients. Tout d'abord, le modèle mécaniste inclut diverses propriétés des matériaux (par exemple, la perméabilité, la pression capillaire...) qui doivent être déterminées expérimentalement en fonction de la teneur en eau. Ce sont des expériences difficiles qui prennent beaucoup de temps [6]. Deuxièmement, il est difficile de résoudre numériquement un système composé de nombreuses équations différentielles partielles non linéaires couplées. Troisièmement, ce modèle ne prend pas en compte la déformation de la phase solide. Par conséquent, si cette déformation devait être prise en compte, il faudrait ajouter un bilan massique supplémentaire pour la phase solide, ce qui rendrait le système encore plus compliqué.

Ainsi, afin d'obtenir un modèle gérable et pratique, la simplification de l'ensemble des équations semble inévitable. La simplification la plus fréquemment rencontrée dans la modélisation du séchage est l'utilisation de ce que l'on appelle le coefficient de diffusion apparent de l'eau  $D_{app}$ . Ce coefficient intègre tous les mécanismes de transport de l'eau en un seul coefficient de diffusion. Le modèle qui suit cette hypothèse est souvent appelé "modèle de diffusion". Il possède un coefficient de diffusion apparent  $D_{app}(X,T)$  qui dépend de la teneur en eau du milieu poreux et de sa température. Le modèle de diffusion est un modèle plus phénoménologique, par opposition au modèle mécaniste. Ce modèle est également connu par

l'équation de Richard, une version modifiée de la deuxième loi de diffusion de Fick où le coefficient de diffusion n'est pas constant. Comme le rapportent de nombreux chercheurs [34, 35], afin de modéliser le transfert de masse pendant le séchage, un terme d'évaporation ( $\frac{\dot{m}}{\rho_L}$ ) doit être ajouté dans l'équation de transfert de masse. L'équation de transfert de masse pour un corps rigide pourrait également être exprimée par la teneur en eau  $X$  (kg eau. kg<sup>-1</sup> solide) au lieu des concentrations en eau ( $C_f$ ,  $C_v$  et  $C_b$ ) (kg. m<sup>-3</sup>), comme indiqué ci-dessous :

$$\frac{\partial X}{\partial t} = -\nabla \cdot D_{app}(X, T) \nabla X - \frac{\dot{m}}{\rho_L} \quad (\text{II-10})$$

Il a également été démontré que le modèle de diffusion pouvait être dérivé du modèle mécaniste en faisant quelques simplifications [4, 36]. Le modèle de diffusion présente deux avantages principaux par rapport au modèle mécaniste. Premièrement, le nombre de propriétés inconnues est réduit à deux paramètres (le coefficient de diffusion apparent et le terme d'évaporation). Deuxièmement, l'adaptation du modèle de diffusion à un milieu déformable est plus facile que le modèle mécaniste. Des procédures standards sont disponibles pour la résolution numérique de l'équation de diffusion. Pour toutes ces raisons, le modèle de diffusion sera adopté dans ce travail.

De nombreuses études ont travaillé sur le séchage de milieux déformables suite à un phénomène de retrait, comme les boues [37–40]. Il a été démontré que le phénomène de retrait doit être pris en compte lors de la modélisation du processus de séchage dans la plupart des matériaux déformables. En comparant les simulations avec et sans retrait, il a été constaté que le fait de négliger le retrait conduit à une sous-estimation de la vitesse de séchage et du transport d'eau par diffusion. Le modèle de diffusion est toujours valable mais doit être mis à jour afin de tenir compte du retrait pendant le séchage. Le phénomène de retrait est exprimé dans l'équation de transfert de masse par l'introduction du coefficient de retrait  $\beta$  qui doit être déterminé expérimentalement.

$$\frac{\partial X}{\partial t} = -\nabla \cdot \left( \frac{D_{app}(X, T)}{\left(1 + \beta \frac{X}{X_0}\right)^2} \nabla X \right) - \frac{\dot{m}}{\rho_L} \quad (\text{II-11})$$

Ainsi, afin de simuler le transfert d'eau dans les boues, nous devons déterminer trois paramètres principaux : le coefficient de diffusion apparent d'eau ( $D_{app}$ ), la vitesse d'évaporation ( $\dot{m}$ ) et le coefficient de retrait ( $\beta$ ). Il est important de noter que l'Équation (II-11) est applicable dans la condition d'un système à retrait maximal. Cela signifie que la diminution du volume des boues est supposée être exactement égale au volume de l'eau retirée. Par conséquent, il n'y a pas de formation de phase gazeuse et le volume d'eau évaporée est compensé par le retrait. Ainsi, il serait intéressant de vérifier cette hypothèse de système de retrait maximal, en évaluant l'évolution de la phase gazeuse à l'intérieur du milieu poreux de la boue.

#### 4.2. Transfert de chaleur

Lors du séchage des boues, la chaleur est fournie par conduction à partir de l'atmosphère chaude environnante (Figure II-9). Une équation de bilan thermique doit être ajoutée afin de simuler l'évolution de la température à l'intérieur du milieu poreux pendant le séchage [30]. La chaleur fournie provoque l'évaporation de l'eau et la vapeur qui en résulte doit traverser le réseau poreux de la boue et sortir de l'équipement de séchage.

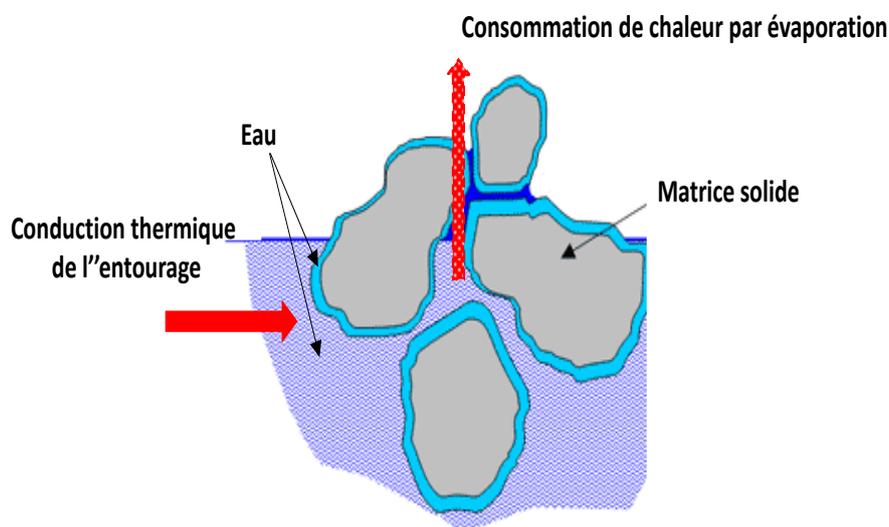


Figure II-9 : Mécanisme de transfert de chaleur pendant le séchage de la boue, adapté de [9].

Le transfert de chaleur est représenté mathématiquement par la loi de Fourier de conduction de la chaleur en raison du type de séchage utilisé [27] :

$$\rho_{app} c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (K_{eff} \nabla T) - \dot{m} \Delta H_{vap} \quad (\text{II-12})$$

Où  $\rho_{app}$  est la masse volumique apparente de la boue ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ),  $c_p$  est la capacité calorifique ( $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ),  $K_{eff}$  est la conductivité thermique ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ), et  $\dot{m} \Delta H_{vap}$  est le puits de chaleur (W).

Pour se produire, l'évaporation nécessite de l'énergie qui est exprimée dans l'équation de transfert de chaleur par un puits de chaleur. De même, afin de simuler le transfert de chaleur dans la boue pendant le séchage, il faut déterminer ses propriétés thermiques, ainsi que sa masse volumique apparente. Les propriétés thermiques, telles que la conductivité thermique effective et la capacité calorifique, sont des paramètres principaux dans le processus de séchage. On constate que les propriétés thermiques dépendent de la nature chimique du matériau, de sa teneur en eau, de la concentration en solutés et de sa température [41, 42]. Comme la teneur en eau et la température varient à l'intérieur de la boue pendant le séchage, en raison des mécanismes simultanés de transfert de masse et de chaleur, il est important de déterminer la variation de ces propriétés thermiques en fonction de ces variables. Comme le rapportent plusieurs travaux [42, 43], on constate que les propriétés thermiques diminuent avec la réduction de la teneur en eau. La capacité calorifique dépend également de la concentration de soluté dans la phase aqueuse. Les propriétés thermiques diminuent également avec la diminution de la température.

De nombreuses méthodes pourraient être utilisées pour déterminer la conductivité thermique effective, comme le montrent plusieurs études [44]. Ces méthodes sont classées en deux catégories : les méthodes en régime permanent (SSM) et les méthodes en régime transitoire (TM). Les méthodes en régime permanent les plus utilisées sont les suivantes :

plaque chaude gardée [45], cylindre concentrique [46], débitmètre de flux thermique et méthode de Kohlransch modifiée [47]. La méthode de la plaque chaude gardée est la procédure standard recommandée par 'l'American Society for testing materials'. Elle implique une source de chaleur générant un flux thermique indépendant du temps et un puits thermique. Une fois que l'équilibre thermique est établi, le gradient de température est mesuré et la conductivité thermique effective est déduite. Les méthodes transitoires, telles que la 'line heat source' et le comparateur thermique, consistent à soumettre l'échantillon testé à un flux de chaleur dépendant du temps et à surveiller la température en différents points de l'échantillon, afin de déterminer la conductivité thermique effective.

La capacité calorifique  $c_p$  ( $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ ) est l'énergie qui doit être apportée à une masse donnée d'un produit pour augmenter sa température d'un Kelvin. La capacité calorifique est souvent mesurée en utilisant soit la méthode de mélange, soit le calorimètre adiabatique ou le calorimètre différentiel à balayage (DSC), comme le rapporte Lind [48]. La méthode DSC est la méthode la plus recommandée pour déterminer la capacité calorifique. La méthode DSC permet d'utiliser de très petits échantillons et nécessite un temps relativement court pour mesurer la capacité calorifique [49].

#### 4.3. Retrait volumique

Le séchage des milieux poreux peut produire de grandes variations de leur volume et de leur surface d'échange simultanément avec la perte d'eau. Le retrait est le phénomène qui résulte de la réduction du volume du matériau humide chauffé en raison de l'évaporation de l'eau [37, 50]. Lorsque l'eau est éliminée, un déséquilibre de pression se produit entre l'intérieur du matériau et l'atmosphère extérieure. Cela génère des contraintes de contraction qui entraînent un retrait et une fissuration occasionnelle du matériau [51]. En particulier, le phénomène de retrait affecte le coefficient de diffusion d'eau du produit, qui est l'un des principaux paramètres déterminants dans le mécanisme de transfert d'eau [3, 7]. Par conséquent, la cinétique de séchage et

l'ensemble du processus de séchage peuvent être affectés.

En outre, la masse volumique apparente du milieu poreux (comme la boue) est un facteur déterminant pour diverses caractéristiques, de sorte que la connaissance de son évolution en fonction de la teneur en eau est nécessaire pour étudier le comportement du produit pendant le séchage. Il est donc nécessaire de quantifier le phénomène de retrait pour les matériaux rétractables et d'en tenir compte dans la modélisation du séchage [8, 15, 37, 52, 53]. Il a également été montré que le retrait du milieu poreux humide, comme la boue, augmente avec le volume d'eau éliminé, car plus l'eau est éliminée, plus les contraintes de contraction sont générées dans le matériau [54]. Le retrait macroscopique est communément défini par le rapport entre le volume du produit à un temps de séchage donné et le volume initial. Selon la littérature [55–57], le milieu poreux humide se contracte linéairement avec la réduction de sa teneur en eau jusqu'à ce qu'il atteigne une valeur critique de teneur en eau. Le volume reste alors constant jusqu'à la fin du séchage, malgré la réduction continue de la teneur en eau. La valeur critique correspond à la limite de retrait lorsque les particules solides sont réunies.

#### 4.4. Cristallisation

Le séchage en présence de sels dissous entraîne la formation de cristaux de sel dans le milieu poreux. La formation de sel cristallisé peut avoir lieu à l'intérieur du milieu poreux (sub-florescence), ou sur la surface extérieure (efflorescence). Comme le rapportent plusieurs études [58, 59], la cinétique de la solution saline en évaporation pourrait être affectée par les types de sels dissous et leurs concentrations initiales, ce qui pourrait avoir un impact sur la cinétique de séchage. Selon la littérature, la formation d'efflorescence a différents effets qui pourraient sembler controversés. Par exemple, plusieurs travaux [60, 61] rapportent que la formation de croûte due à l'efflorescence limite sévèrement l'évaporation de l'eau. Au contraire, de nombreuses autres études [62, 63] montrent que la formation d'efflorescence augmente la vitesse de séchage. Eloukabi et al. [64] illustrent les interactions complexes induites par la

formation d'efflorescence et leur effet sur la cinétique de séchage. Il a été démontré que la nature saline, la caractéristique du milieu poreux (par exemple la taille des pores) pouvaient affecter l'impact de l'efflorescence saline sur la vitesse de séchage. La formation d'une croûte bloquante (appelée efflorescence croûteuse) ou d'une efflorescence qui améliore la cinétique de séchage peuvent toutes deux être créées dans les mêmes conditions d'évaporation, simplement en modifiant la taille moyenne des pores du milieu ou le type du sel.

## 5. Conclusions

Ce chapitre a présenté les bases de notions générales utiles pour étudier le séchage d'un milieu poreux tel que les boues. Les notions importantes du séchage, la forme d'eau, ainsi que les mécanismes référencés qui ont lieu pendant le séchage ont été énoncées. Différentes formes d'eau peuvent être présentes dans un milieu poreux et affecter son activité. L'activité d'eau est un paramètre clé dans le processus de séchage d'un milieu poreux, elle est une caractéristique des interactions microscopiques entre la phase aqueuse et la phase solide. Ensuite, une analyse globale de la courbe de la vitesse de séchage a été discutée. L'évolution de la vitesse de séchage avec la réduction de l'eau est décrite et associée à trois périodes différentes. La période de préchauffage se produit au début du séchage, elle implique l'augmentation de la température du produit jusqu'à ce que l'eau libre commence à s'évaporer. La période à vitesse constante consiste en une vitesse de séchage constante qui dure tant que l'eau libre est rapidement amenée à la surface. La période à vitesse décroissante se produit finalement lorsque la surface extérieure du produit séché atteint le seuil hygroscopique. Cette période se poursuit jusqu'à ce que la vitesse de séchage s'annule à la fin du séchage, lorsque le produit est en équilibre avec l'environnement externe. Il a été aussi démontré l'applicabilité et l'avantage d'utiliser un modèle de diffusion plutôt qu'un modèle mécaniste, afin de simuler le transfert de masse dans les milieux poreux au cours du séchage. Dans le modèle de diffusion, le coefficient de diffusion apparent est une fonction de la teneur en eau et de la température et doit être déterminé expérimentalement. En

utilisant la méthode de séchage par conduction, la chaleur est fournie par conduction à partir de l'environnement chaud externe. Le transfert de chaleur pourrait être exprimé mathématiquement par la loi de Fourier sur la conduction de la chaleur. Le coefficient de retrait apparaît comme un paramètre crucial à prendre en compte, lors de la modélisation du séchage de milieux poreux très déformables tels que les boues. Il intervient dans le transfert de masse et affecte le coefficient de diffusion. Les propriétés thermiques et autres propriétés thermo-physiques utilisées dans l'ensemble des équations, étant des paramètres intrinsèques de la boue, doivent être déterminées expérimentalement. Les deux chapitres suivants apportent une étude de caractérisation expérimentale qui a permis de déterminer les propriétés intrinsèques de la boue étudiée, en fonction de la teneur en eau et de la température. Ces propriétés seront ensuite utilisées comme données d'entrée dans la modélisation numérique qui simule le séchage de la boue.

## Références

- [1] Rahimi Borujerdi, P.; Shotorban, B.; Mahalingam, S.; Weise, D. R. Modeling of Water Evaporation from a Shrinking Moist Biomass Slab Subject to Heating: Arrhenius Approach versus Equilibrium Approach. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2019**, *145*, 118672. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118672>.
- [2] Lozano, A.-L.; Cherblanc, F.; Cousin, B.; Bénet, J.-C. Experimental Study and Modelling of the Water Phase Change Kinetics in Soils. *European Journal of Soil Science*, **2008**, *59* (5), 939–949. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2389.2008.01050.x>.
- [3] Itaya, Y.; Mabuchi, S.; Hasatani, M. Deformation Behavior of Ceramic Slabs by Non Uniform Drying. *Drying Technology*, **1995**, *13* (3), 801–819. <https://doi.org/10.1080/07373939508916984>.
- [4] Lartigue, C.; Puiggali, J. R.; Quintard, M. A Simplified Study of Moisture Transport and Shrinkage in Wood. *Drying '89*, **1989**, pp 169–179.
- [5] Krokida, M. K.; Zogzas, N. P.; Maroulis, Z. B. Modelling Shrinkage and Porosity during Vacuum Dehydration. *International Journal of Food Science & Technology*, **1997**, *32* (6), 445–458. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.1997.tb02119.x>.
- [6] Shishido I.; Muramatsu T.; Ohtani S. Local Moisture Content And Stress Distributions Within Clay During Drying Shrinkage. *Kagaku kogaku ronbunshu*, **1988**, *14* (1), 87–94. <https://doi.org/10.1252/kakoronbunshu.14.87>.
- [7] Kowalski, S. J. Thermomechanical Approach to Shrinking and Cracking Phenomena in Drying. *Drying Technology*, **2001**, *19* (5), 731–765. <https://doi.org/10.1081/DRT-100103768>.
- [8] Chemkhi, S.; Zagrouba, F.; Bellagi, A. Mathematical Model for Drying of Highly Shrinkable Media. *Drying Technology*, **2004**, *22* (5), 1023–1039. <https://doi.org/10.1081/DRT-120038578>.
- [9] Tissot, J.-P. *Propriétés Mécaniques et Physiques Des Sols; Institut National Polytechnique de Lorraine*.
- [10] Vesilind, P. A.; Martel, C. J. Freezing of Water and Wastewater Sludges. *Journal of Environmental Engineering*, **1990**, *116* (5), 854–862. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)0733-9372\(1990\)116:5\(854\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9372(1990)116:5(854)).
- [11] Smollen, M. Evaluation of Municipal Sludge Drying and Dewatering with Respect to Sludge Volume Reduction. *Water Science and Technology*, **1990**, *22* (12), 153–161. <https://doi.org/10.2166/wst.1990.0110>.
- [12] Dzyaloshinskii, I. E.; Lifshitz, E. M.; Pitaevskii, L. P. General Theory Of Van Der Waals' Forces. *Sov. Phys. Usp.*, **1961**, *4* (2), 153–176. <https://doi.org/10.1070/PU1961v004n02ABEH003330>.
- [13] Scott, W. J. Water Relations of Food Spoilage Microorganisms. In *Advances in Food Research*; Elsevier, **1957**; Vol. 7, pp 83–127. [https://doi.org/10.1016/S0065-2628\(08\)60247-5](https://doi.org/10.1016/S0065-2628(08)60247-5).
- [14] Resnik, S. L.; Chirife, J. Proposed Theoretical Water Activity Values at Various Temperatures for Selected Solutions to Be Used as Reference Sources in the Range of Microbial Growth. *Journal of Food Protection*, **1988**, *51* (5), 419–423. <https://doi.org/10.4315/0362-028X-51.5.419>.
- [15] Dissa, A. O.; Compaore, A.; Tiendrebeogo, E.; Koulidiati, J. An Effective Moisture Diffusivity Model Deduced from Experiment and Numerical Solution of Mass Transfer Equations for a Shrinkable Drying Slab of Microalgae. *Drying Technology*, **2014**, *32* (10), 1231–1244. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.897234>.
- [16] Lykiema, J.; Sing, K. S. W.; Haber, J.; Kerker, M.; Wolfram, E.; Block, J. H.; Churaev, N. V.; Everett, D. H.; Hansen, R. S.; Haul, R. A. W.; et al. Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with Special Reference to the Determination of Surface Area and Porosity. *Pure and applied chemistry*, **1984**, *54*, 2201–2218.
- [17] Langmuir, I. The Adsorption Of Gases On Plane Surfaces Of Glass, Mica And Platinum. *Journal of American Chemical Society*, **1918**, *40* (9), 1361–1403. <https://doi.org/10.1021/ja02242a004>.
- [18] Penner, E. A. Comparison of the New Vapor Sorption Analyzer to the Traditional Saturated Salt Slurry Method and the Dynamic Vapor Sorption Instrument. *University of Illinois at Urbana-Champaign*, **2013**.

- [19] Brunauer, S.; Emmett, P. H.; Teller, E. Adsorption of Gases in Multimolecular Layers. *Journal of American Chemical Society*, **1938**, *60* (2), 309–319. <https://doi.org/10.1021/ja01269a023>.
- [20] Bajpai, P. Colloid and Surface Chemistry. In *Biermann's Handbook of Pulp and Paper*; Elsevier, **2018**; pp 381–400. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814238-7.00019-2>.
- [21] Dagueneat, M. Les Séchoirs Solaires: Théorie et Pratique. *Organisation Des Nations Unies Pour L'éducation, La Science Et La Culture*, **1985**.
- [22] Gonçalves, T. D.; Brito, V.; Pel, L. Water Vapor Emission From Rigid Mesoporous Materials during the Constant Drying Rate Period. *Drying Technology*, **2012**, *30* (5), 462–474. <https://doi.org/10.1080/07373937.2011.647184>.
- [23] Vaxelaire, J.; Bongiovanni, J. M.; Mousques, P.; Puiggali, J. R. Thermal Drying of Residual Sludge. *Water Research*, **2000**, *34* (17), 4318–4323. [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(00\)00193-7](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(00)00193-7).
- [24] Saxena, S. C. Transport Processes and Unit Operations, *AIChE Journal.*, **1980**, *26* (2), 331–332. <https://doi.org/10.1002/aic.690260236>.
- [25] Keey, R. B. Introduction to Industrial Drying Operations. *Pergamon Press: Oxford-New York*, **1978**, *51* (2), 155–156.
- [26] Nadeau, J.; Puiggali, J. R. Séchage. Des Processus Physiques Aux Procédés Industriels. *Technique et Documentation-Lavoisier*, **1995**.
- [27] *Drying and Energy Technologies*; Delgado, J. M. P. Q., Barbosa de Lima, A. G., Eds.; Advanced Structured Materials; *Springer International Publishing: Cham*, **2016**; Vol. 63. <https://doi.org/10.1007/978-3-319-19767-8>.
- [28] Plumb, O. A.; Spolek, G. A.; Olmstead, B. A. Heat and Mass Transfer in Wood during Drying. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **1985**, *28* (9), 1669–1678. [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(85\)90141-3](https://doi.org/10.1016/0017-9310(85)90141-3).
- [29] Bear, J.; Bachmat, Y. *Introduction to Modeling of Transport Phenomena in Porous Media*; *Kluwer Academic Publishers: United States*, **1990**.
- [30] Stanish, M. A.; Schajer, G. S.; Kayihan, F. A Mathematical Model of Drying for Hygroscopic Porous Media. *AIChE Journal*, **1986**, *32* (8), 1301–1311. <https://doi.org/10.1002/aic.690320808>.
- [31] Peishi, C.; Pei, D. C. T. A Mathematical Model of Drying Processes. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **1989**, *32* (2), 297–310. [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(89\)90177-4](https://doi.org/10.1016/0017-9310(89)90177-4).
- [32] Ouelhazi, N.; Arnaud, G.; Fohr, J. P. A Two-Dimensional Study of Wood Plank Drying. The Effect of Gaseous Pressure below Boiling Point. *Transp Porous Medium*, **1992**, *7* (1), 39–61. <https://doi.org/10.1007/BF00617316>.
- [33] Perre, P.; Fohr, J. P.; Arnaud, G. A Model of Drying Applied to Softwood: The Effect of Gaseous Pressure below the Boiling Point. *Drying '89 (Edited by A.S. Mujumdar & M.A. Roques, Hemisphere)*, **1989**, pp 91–99.
- [34] Murru, M.; Giorgio, G.; Montomoli, S.; Ricard, F.; Stepanek, F. Model-Based Scale-up of Vacuum Contact Drying of Pharmaceutical Compounds. *Chemical Engineering Science*, **2011**, *66* (21), 5045–5054. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.06.059>.
- [35] Kohout, M.; Collier, A. P.; Štěpánek, F. Mathematical Modelling of Solvent Drying from a Static Particle Bed. *Chemical Engineering Science*, **2006**, *61* (11), 3674–3685. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.12.036>.
- [36] Puiggali, J. R.; Quintard, M.; Whitaker, S. Drying Granular Porous Media: Gravitational Effects In The Isenthalpic Regime And The Role Of Diffusion Models. *Drying Technology*, **1988**, *6* (4), 601–629. <https://doi.org/10.1080/07373938808916401>.
- [37] Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Léonard, A. Modeling and Simulation of Heat and Mass Transfer during Convective Drying of Wastewater Sludge with Introduction of Shrinkage Phenomena. *Drying Technology*, **2014**, *32* (1), 13–22. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.807281>.
- [38] Hassine, N. B.; Chesneau, X.; Laatar, A. H. Numerical Modeling of Heat and Mass Transfers under Solar Drying of Sewage Sludge. *Heat Transfer Research*, **2012**, *49* (4), 327–348. <https://doi.org/10.1615/HeatTransRes.2018017977>.

- [39] Thuwapanichayanan, R.; Prachayawarakorn, S.; Soponronnarit, S. Modeling of Diffusion with Shrinkage and Quality Investigation of Banana Foam Mat Drying. *Drying Technology*, **2008**, *26* (11), 1326–1333. <https://doi.org/10.1080/07373930802330979>.
- [40] Luo, H.; Xia, W.; Xu, Y.; Jiang, Q. Diffusive Model with Variable Effective Diffusivity Considering Shrinkage for Hot-Air Drying of Lightly Salted Grass Carp Fillets. *Drying Technology*, **2013**, *31* (7), 752–758. <https://doi.org/10.1080/07373937.2012.755542>.
- [41] Guiné, R. P. F.; Gonçalves, J. C.; Calado, A. R. P.; Correia, P. M. R. Evaluation of Thermo-Physical Properties and Drying Kinetics of Carrots in a Convective Hot Air Drying System. *CIGR Journal*, **2016**, *18* (13).
- [42] Septien, S.; Mirara, S. W.; Makununika, B. S. N.; Singh, A.; Pocock, J.; Velkushanova, K.; Buckley, C. A. Effect of Drying on the Physical and Chemical Properties of Faecal Sludge for Its Reuse. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, **2020**, *8* (1), 103652. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.103652>.
- [43] Perussello, C. A.; Mariani, V. C.; Amarante, Á. C. C. do. Thermophysical Properties of Okara During Drying. *International Journal of Food Properties*, **2014**, *17* (4), 891–907. <https://doi.org/10.1080/10942912.2011.628430>.
- [44] Jannot, Y.; Degiovanni, A. *Thermal Properties Measurement of Materials*; John Wiley & Sons, Inc.: Hoboken, NJ, USA, **2018**. <https://doi.org/10.1002/9781119475057>.
- [45] Yang, I.; Kim, D.; Lee, S. Construction and Preliminary Testing of a Guarded Hot Plate Apparatus for Thermal Conductivity Measurements at High Temperatures. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2018**, *122*, 1343–1352. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.02.072>.
- [46] Tufeu, R.; Petitet, J. P.; Denielou, L.; Le Neindre, B. Experimental Determination of the Thermal Conductivity of Molten Pure Salts and Salt Mixtures. *International Journal of Thermophysics*, **1985**, *6* (4), 315–330. <https://doi.org/10.1007/BF00500266>.
- [47] Jensen, H. G. Kohlrausch Heat Conductivity Apparatus for Intermediate or Advanced Laboratory. *American Journal of Physics*, **1970**, *38* (7), 870–874. <https://doi.org/10.1119/1.1976485>.
- [48] Lind, I. The Measurement and Prediction of Thermal Properties of Food during Freezing and Thawing — A Review with Particular Reference to Meat and Dough. *Journal of Food Engineering*, **1991**, *13* (4), 285–319. [https://doi.org/10.1016/0260-8774\(91\)90048-W](https://doi.org/10.1016/0260-8774(91)90048-W).
- [49] Azadbakht, M.; Khoshtaghaza, M. H.; Ghobadian, B.; Minaei, S. Thermal Properties of Soybean Pod as a Function of Moisture Content and Temperature. *American Journal of Food Science and Technology*, **2013**, *1* (2), 9–13. <https://doi.org/10.12691/ajfst-1-2-1>.
- [50] Belloulid, M. O.; Hamdi, H.; Mandi, L.; Ouazzani, N. Solar Drying of Wastewater Sludge: A Case Study in Marrakesh, Morocco. *Environmental Technology*, **2019**, *40* (10), 1316–1322. <https://doi.org/10.1080/09593330.2017.1421713>.
- [51] Léonard, A.; Vandevenne, P.; Salmon, T.; Marchot, P.; Crine, M. Wastewater Sludge Convective Drying: Influence of Sludge Origin. *Environmental Technology*, **2004**, *25* (9), 1051–1057. <https://doi.org/10.1080/09593330.2004.9619398>.
- [52] Pinto, L. A. A.; Tobinaga, S. Diffusive Model with Shrinkage in the Thin-Layer Drying of Fish Muscles. *Drying Technology*, **2006**, *24* (4), 509–516. <https://doi.org/10.1080/07373930600612040>.
- [53] Li, J.; Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Salmon, T.; Toye, D.; Schreinemachers, R.; Léonard, A. Analysis of the Shrinkage Effect on Mass Transfer during Convective Drying of Sawdust/Sludge Mixtures. *Drying Technology*, **2014**, *32* (14), 1706–1717. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.924136>.
- [54] Adiletta, G.; Iannone, G.; Russo, P.; Patimo, G.; De Pasquale, S.; Di Matteo, M. Moisture Migration by Magnetic Resonance Imaging during Eggplant Drying: A Preliminary Study. *Int J Food Science Technology*, **2014**, *49* (12), 2602–2609. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12591>.
- [55] Ketelaars, A. A. J. Drying Deformable Media Kinetics, Shrinkage and Stresses. *Drying Technology*, **1994**, *12* (4), 983–987. <https://doi.org/10.1080/07373939408960008>.
- [56] Cooper, A. R. Quantitative Theory of Cracking and Warping of Clay Bodies. *Ceramics Processing before Firing*, Wiley, New York, **1975**, pp 261–276.

- [57] Chemkhi, S. Physico-Chemical and Mechanical Behavior of Natural Clay as a Porous Medium during Convective Drying. *American Ceramic Society Journal*, **2015**, 6 (3), 126–135. <https://doi.org/10.9734/ACSJ/2015/15746>.
- [58] Shokri-Kuehni, S. M. S.; Norouzi Rad, M.; Webb, C.; Shokri, N. Impact of Type of Salt and Ambient Conditions on Saline Water Evaporation from Porous Media. *Advances in Water Resources*, **2017**, 105, 154–161. <https://doi.org/10.1016/j.advwatres.2017.05.004>.
- [59] Jambhekar, V. A.; Mejri, E.; Schröder, N.; Helmig, R.; Shokri, N. Kinetic Approach to Model Reactive Transport and Mixed Salt Precipitation in a Coupled Free-Flow–Porous-Media System. *Transport in Porous Media*, **2016**, 114 (2), 341–369. <https://doi.org/10.1007/s11242-016-0665-3>.
- [60] Nachshon, U.; Shahraeeni, E.; Or, D.; Dragila, M.; Weisbrod, N. Infrared Thermography of Evaporative Fluxes and Dynamics of Salt Deposition on Heterogeneous Porous Surfaces: Irt Of Evaporation And Salt Precipitation. *Water Resources Research*, **2011**, 47 (12). <https://doi.org/10.1029/2011WR010776>.
- [61] Nachshon, U.; Weisbrod, N.; Dragila, M. I.; Grader, A. Combined Evaporation and Salt Precipitation in Homogeneous and Heterogeneous Porous Media. *Water Resources Research*, **2011**, 47 (3). <https://doi.org/10.1029/2010WR009677>.
- [62] Eloukabi, H.; Sghaier, N.; Prat, M.; Ben Nassrallah, S. Drying Experiments in a Hydrophobic Model Porous Medium in the Presence of a Dissolved Salt. *Chemical Engineering Technology*, **2011**, 34 (7), 1085–1094. <https://doi.org/10.1002/ceat.201100064>.
- [63] Sghaier, N.; Prat, M. Effect of Efflorescence Formation on Drying Kinetics of Porous Media. *Transport in Porous Media*, **2009**, 80 (3), 441–454. <https://doi.org/10.1007/s11242-009-9373-6>.
- [64] Eloukabi, H.; Sghaier, N.; Ben Nasrallah, S.; Prat, M. Experimental Study of the Effect of Sodium Chloride on Drying of Porous Media: The Crusty–Patchy Efflorescence Transition. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2013**, 56 (1–2), 80–93. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.09.045>.

### III. Matériel et méthodes de caractérisation des boues

Une étude de caractérisation préliminaire des boues est nécessaire pour acquérir les données d'entrée du modèle numérique décrivant les mécanismes couplés. Ainsi, l'objectif de ce travail de caractérisation est de déterminer la conductivité thermique effective, la capacité calorifique, le phénomène de retrait, la masse volumique apparente, la diffusivité apparente de l'eau et l'activité de l'eau en fonction de la teneur en eau et de la température. Dans cette étude, la cinétique de séchage à différentes températures et humidité relative conduit à déterminer les isothermes de sorption de l'eau et le coefficient de diffusion apparent. Ce coefficient est déterminé numériquement sur la base de la méthode du problème inverse pour résoudre l'équation de Richard en tenant compte du retrait. Le phénomène de retrait des boues est déterminé indépendamment par deux méthodes différentes.

#### 1. Matériel

Pour des raisons de sécurité expérimentale, les boues nucléaires sont remplacées par des boues non radioactives. Ces boues sont synthétisées par *Orano*, selon une méthode de coprécipitation par addition successive de réactifs, ce qui conduit à la formation d'une boue contenant des sels insolubles, des sels solubles et de l'eau interstitielle. Cette méthode de synthèse est représentative du procédé mis en place à *La Hague* et conduit à produire des boues de composition chimique similaire. Après la réaction de coprécipitation, la suspension est centrifugée pour concentrer le précipité dans des boues contenant une solution résiduelle, afin d'obtenir un rapport solide/ solution choisi.

Dans ces études de caractérisation expérimentale, deux séries de boues sont utilisées : la boue A et la boue B. Leur composition est déterminée par analyse chimique dans les laboratoires du *CEA* et est indiquée dans le Tableau III-1. Elles ont des teneurs initiales en solution différentes, avec les mêmes concentrations initiales en sels. La boue A a été initialement produite pour la détermination des caractéristiques intrinsèques et contient une

teneur initiale en eau de 210 % (kg d'eau. kg<sup>-1</sup>solide). Alors que la boue B a une teneur initiale en eau de 380 % (kg d'eau. kg<sup>-1</sup> solide). Elle a été produite ultérieurement pour être utilisée dans les essais de séchage dans la maquette instrumentée. Il a été décidé de produire une boue plus fluide (boue B) que celle principalement étudiée (boue A), afin de faciliter le remplissage de la cuve de la maquette expérimentale, car la boue A était très pâteuse et difficile à manipuler. Les propriétés thermiques de la boue B (entre 210 et 380 %) ont été déduites ou bien extrapolées à partir des résultats expérimentaux déterminés sur la boue A (de 0 à 210 %), ou bien déterminées expérimentalement.

Tableau III-1 : Composition chimique de la boue A et de la boue B sur une base sèche.

% massique à base sèche			
	Composant	Boue A	Boue B
	Ti(OH) <sub>4</sub>	10,5	9,1
Sels insolubles	Fe,Ni(CN) <sub>6</sub> K <sub>4</sub>	9,2	7,9
	BaSO <sub>4</sub>	46,3	40,1
	CoS	14,7	12,7
Sels solubles	NaNO <sub>3</sub>	10,8	16,9
	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	8,5	13,3
TOTAL		100	100

En revanche, le phénomène de retrait a dû être déterminé à la fois sur la boue A et la boue B, car il dépend de la teneur en eau initiale de la matière. Les propriétés de la boue A sont ensuite utilisées comme paramètres d'entrée pour le modèle numérique de séchage des échantillons de 30 g de boue A. Alors que les propriétés déduites de la boue B sont utilisées comme paramètres d'entrée pour le modèle numérique de séchage de la maquette expérimentale instrumentée à l'échelle du laboratoire et à l'échelle du fût. Les principaux lots de boue A et de boue B sont stockés dans des conteneurs scellés pour éviter toute perte d'eau pendant la période de l'étude de caractérisation.

## 2. Propriétés thermiques

Les propriétés thermiques telles que la conductivité thermique effective et la capacité calorifique sont essentielles pour déterminer l'évolution du gradient de chaleur et la répartition

de la température dans la boue pendant le séchage. Les méthodes expérimentales utilisées pour déterminer ces deux paramètres sont détaillées ci-après.

## 2.1. Conductivité thermique effective

Il est nécessaire de déterminer la conductivité thermique effective vu que les 3 phases (gaz, liquide et solide) coexistent dans la boue humide [1]. Afin de déterminer la conductivité thermique effective de la boue en fonction de la teneur en eau et de la température, la méthode de la plaque chaude gardée a été choisie [2]. Le principe est de placer le matériau à tester (boue A) entre une plaque chaude et une plaque froide, en générant un flux thermique constant par effet Joule. En outre, l'appareil doit être isolé thermiquement dans toutes les autres directions, afin d'avoir un flux thermique unidimensionnel connu. Une fois que le matériau se réchauffe et tend à atteindre un équilibre thermique, la différence de température entre deux positions permet de déterminer sa conductivité thermique. La conductivité thermique effective est alors déterminée à partir de la loi de Fourier de la conduction thermique dans un régime stationnaire 1D (Équation (III-1)) qui devient comme suit [3]:

$$K_{eff} = \frac{HF \times L}{A \Delta T} \quad (\text{III-1})$$

Avec  $HF$  le flux de chaleur (W),  $A$  ( $\text{m}^2$ ) la surface de contact,  $L$  (m) la distance entre deux thermocouples (épaisseur de la couche de matériau) et  $\Delta T$  (K) la différence de température entre deux thermocouples (capteurs Pt100).

### 2.1.1. Montage expérimental

Une cellule thermique cylindrique est conçue avec un rayon interne de 2 cm, une hauteur de 10 cm et deux couvercles de cuivre de 2 mm d'épaisseur fermant le fond et le dessus (Figure III-1). La surface latérale est thermiquement isolée de sorte que le flux de chaleur se diffuse théoriquement en 1D. L'isolation thermique est assurée par une couche de PTFE (polytétrafluoroéthylène) de 3 mm d'épaisseur ayant une faible conductivité thermique ( $0,25 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ) [4]. La cellule thermique est placée sur une plaque chauffante (C-MAG HS

7 heater) avec une température de surface constante de 65 °C. Quatre capteurs Pt100 sont situés le long de l'axe vertical de la cellule pour mesurer en continu la température dans la boue.

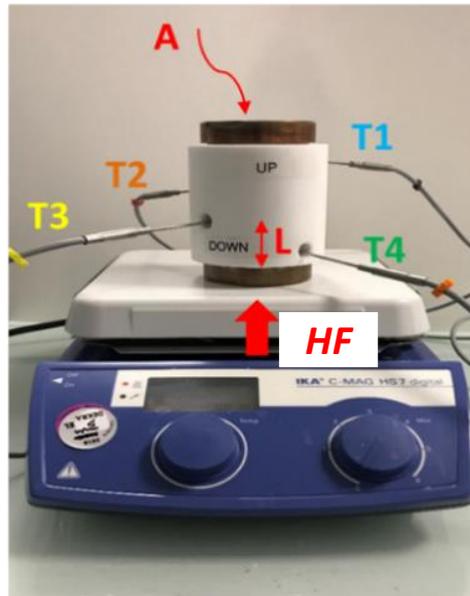


Figure III-1 : Montage expérimental de la méthode de la plaque chaude gardée pour la détermination de la conductivité thermique effective (T1, T2, T3 et T4 sont des capteurs de température Pt100).

Afin d'acquérir les données de température fournies par les capteurs Pt100, un montage électrique est construit comme le montre la Figure III-2. Ce montage électrique se compose d'une série d'alimentation électrique (24 V), de transmetteurs de température et d'enregistreurs de données, qui sont utilisés pour enregistrer les données de température en continu. Les données de température sont affichées à l'aide du logiciel 'EasyLog'.

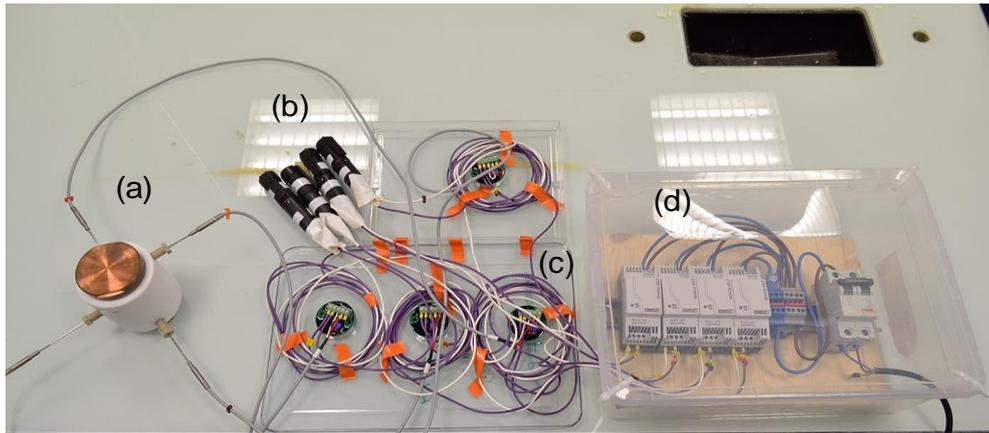


Figure III-2 : Acquisition des données de température par la méthode de la plaque chaude gardée. (a) Cellule thermique ; (b) Enregistreurs de données ; (c) Transmetteurs de température ; (d) Alimentation électrique.

Le flux thermique délivré à la surface de contact de la cellule thermique avec la plaque chauffante est déterminé préalablement grâce à un échantillon de sable avec de mesures effectuées dans les mêmes conditions. La conductivité thermique du sable étant référencée par Fang et al. [5] avec une incertitude de  $\pm 5\%$ , le flux de chaleur pour ces conditions est alors déduit de ces mesures et est égal à 1,02 W. La surface de contact  $A$  est égale à  $12,6 \text{ cm}^2$  et la distance  $L$  entre chacun des deux capteurs Pt100 est égale à 2 cm.

### 2.1.2. Conditions opératoires

Le but de cette série d'expériences est de déterminer la conductivité thermique effective de la boue en fonction de sa température et de sa teneur en eau. Chaque échantillon de boue, testé dans la cellule thermique, est supposé avoir une distribution homogène de la teneur en eau. Dans chaque échantillon, la conductivité thermique est déterminée en fonction de la température. Comme les quatre capteurs Pt100 sont situés à 4 hauteurs différentes de la surface chaude, donc en calculant la conductivité thermique entre chacun des deux capteurs, nous aurons la conductivité thermique de la même boue (même teneur en eau) mais à une température différente. Cette température est supposée être la moyenne des deux températures mesurées par les deux capteurs.

Ainsi, plus de vingt tests sont effectués sur des boues partiellement séchées (boue A) pour obtenir une plage de teneur en eau allant de 210 % (teneur en eau initiale de la boue A) à 0 %. À cette fin, les échantillons de boues A sont séchés pendant différentes périodes afin d'obtenir des échantillons à différentes teneurs en eau. Pour chaque condition, une aliquote est prélevée pour être séchée sous flux d'azote, afin de déterminer sa teneur en eau exacte. Afin de contrôler une éventuelle perte d'eau pendant la mesure, la masse de la cellule remplie est mesurée avant et après l'essai. Environ 7 à 10 heures sont nécessaires pour effectuer la mesure de chaque échantillon.

## 2.2. Capacité calorifique

La méthode de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) est utilisée pour déterminer la capacité calorifique de la boue A [6]. Cette technique fait varier la température de l'unité d'échantillonnage, constituée d'un échantillon et d'un matériau de référence, selon un programme spécifique. En même temps, la différence de température entre l'échantillon et la référence est enregistrée en fonction de la température imposée. Ainsi, la méthode DSC à flux thermique est basée sur la mesure différentielle du flux thermique entre l'échantillon et la référence [7]. Comme le montre la Figure III-3, le DSC à flux thermique contient un élément chauffant, deux thermocouples et deux supports, à savoir un pour l'échantillon et un pour la référence.

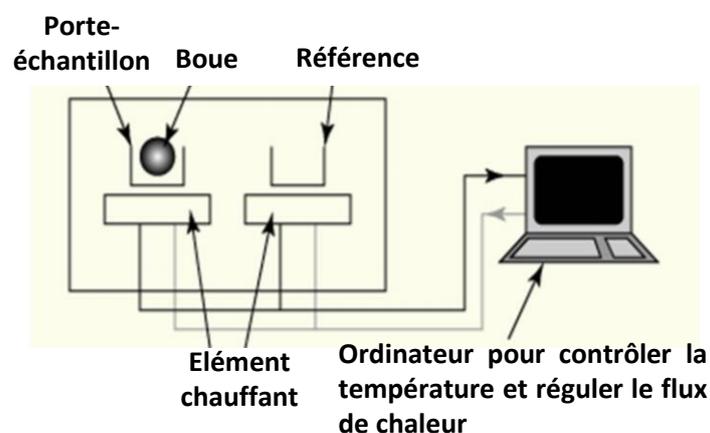


Figure III-3 : Schéma d'un calorimètre (DSC) à flux de chaleur.

Les thermocouples sont reliés aux supports pour enregistrer l'évolution de la température qui conduit à la détermination des valeurs de flux thermique  $HF_{row}$  fournie à l'échantillon. Ainsi, la valeur du flux thermique du matériau  $HF$  est obtenue à partir de la valeur du flux thermique fournie  $HF_{row}$  en soustrayant la valeur du flux thermique absorbé par le porte échantillon vide  $HF_b$  (déterminé par un passage précédent). Les valeurs de capacité calorifique du matériau sont déterminées par étalonnage à l'aide du logiciel 'CALISTO'. Le calibrage est effectué sur la base du signal DSC connu des échantillons de saphir. Dans cette étude, un calorimètre 'DSC 111 – Setaram' est utilisé et couplé à un système de refroidissement à l'azote liquide.

Afin de déterminer l'évolution de la capacité calorifique de la boue A en fonction de la teneur en eau et de la température, plus de quinze échantillons de  $0,135 \pm 0,005$  g chacun sont testés. Ces échantillons ont une teneur en eau comprise entre 210 et 0 %, et sont analysés à un cycle thermique de 30 – 70 °C. Chaque échantillon est rempli dans une capsule de verre scellée. Ces capsules scellées sont conçues pour éviter l'évaporation de l'eau de la boue pendant le cycle thermique du DSC. Pour contrôler une éventuelle perte d'eau, la masse des capsules est mesurée avant et après le cycle thermique. Une rampe de chauffage est réalisée afin de créer un cycle thermique permettant de mesurer la capacité calorifique de la boue à différentes températures. Pour réaliser le cycle thermique, une vitesse de chauffage de  $10 \text{ °C} \cdot \text{min}^{-1}$  est appliquée entre 35 et 70 °C sous atmosphère d'argon inerte (Ar). Environ 7 heures sont nécessaires pour effectuer chaque mesure d'échantillon.

### 3. Phénomène de retrait

Pendant le séchage des boues, des changements structuraux peuvent affecter le comportement de la matière. Le phénomène de retrait résulte de la réduction du volume de la matière humide chauffée au fur et à mesure de l'évaporation d'eau. Ce retrait affecte également la surface d'échange de chaleur et de masse, ainsi que la diffusivité d'eau. Lors de la modélisation des mécanismes de séchage, le transfert de masse pourrait prendre en compte le phénomène de

retrait en introduisant un coefficient de retrait appelé  $\beta$  [8]. Ce coefficient de retrait dépend de l'évolution du volume des boues avec la réduction de l'eau.

Comme le coefficient de retrait  $\beta$  dépend de la teneur en eau initiale du matériau, le phénomène de retrait a été étudié à la fois sur la boue A et la boue B. Ainsi, afin de déterminer l'évolution du volume avec la réduction d'eau, plus de vingt échantillons de boue A ( $30 \pm 0,5$  g) sont séchés dans une étuve à  $65$  °C, une humidité relative de  $46$  % et une pression absolue de  $200$  et  $1000$  mbar. Les échantillons sont séchés pendant des durées différentes afin d'obtenir des échantillons ayant des teneurs en eau et des volumes différents. Pour la même raison, plus de  $10$  échantillons de boue B ( $30 \pm 0,5$  g) sont également séchés pendant différentes durées à  $65$  °C, une humidité relative de  $46$  % et une pression absolue de  $1000$  mbar. Dans ce travail, deux méthodes sont utilisées pour déterminer le retrait de volume avec la réduction d'eau : la méthode de compensation de la réduction de volume appliquée sur la boue A et la boue B, et l'étude micro-tomographique aux rayons X appliquée uniquement sur la boue A.

### 3.1. Compensation de la réduction du volume

La méthode expérimentale choisie consiste à compenser la réduction du volume des boues par de l'huile non miscible. Après séchage, la boue est pesée et une quantité d'huile alimentaire ( $\rho_{oil} = 0,933$  g. cm<sup>-3</sup>) est ajoutée pour remplir le volume initial. Le volume ajouté  $V_{oil}$  est déterminé sur la base de la différence de masse entre la boue séchée avec et sans huile (Figure III-4).

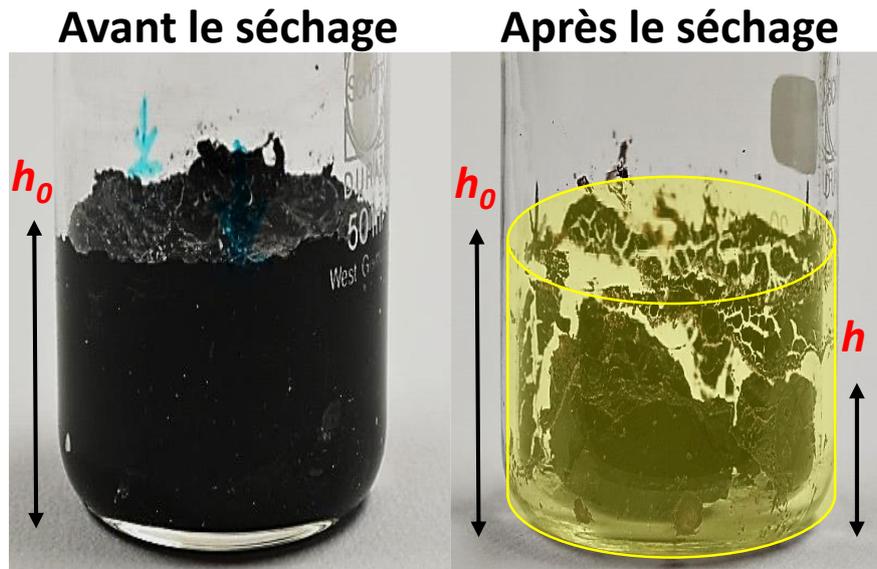


Figure III-4 : Méthode de compensation de la réduction de volume (boue A).

Le volume final de la boue est déterminé en soustrayant son volume initial de celui de l'huile (Équation (III-2)):

$$V_f = V_0 - V_{oil} \quad (\text{III-2})$$

L'avantage de cette méthode est qu'elle peut être appliquée aux échantillons de boues déformables (suspensions denses) qui prennent des formes irrégulières lors du séchage. Par contre, cette méthode est destructrice, l'échantillon n'est plus réutilisable après l'ajout de l'huile.

### 3.2. Étude micro-tomographique

La tomographie à rayons X est une technique non destructive et non intrusive qui permet de visualiser la structure interne d'un matériau. Le phénomène de retrait peut être étudié à l'aide de cette technique, car elle permet également d'accéder au volume global de l'échantillon testé ainsi qu'à sa hauteur et à son rayon.

#### 3.2.1. Principe de la micro-tomographie aux rayons X

La tomographie aux rayons X fournit une image tridimensionnelle reconstruite par compilation numérique d'une série de scanners aux rayons X en 2D. Cette méthode est basée sur un générateur de rayons X, un détecteur 2D et l'objet à caractériser. Le faisceau de rayons X émis par la source, traversant l'objet, s'atténue et arrive au détecteur où il est enregistré (Figure III-5).

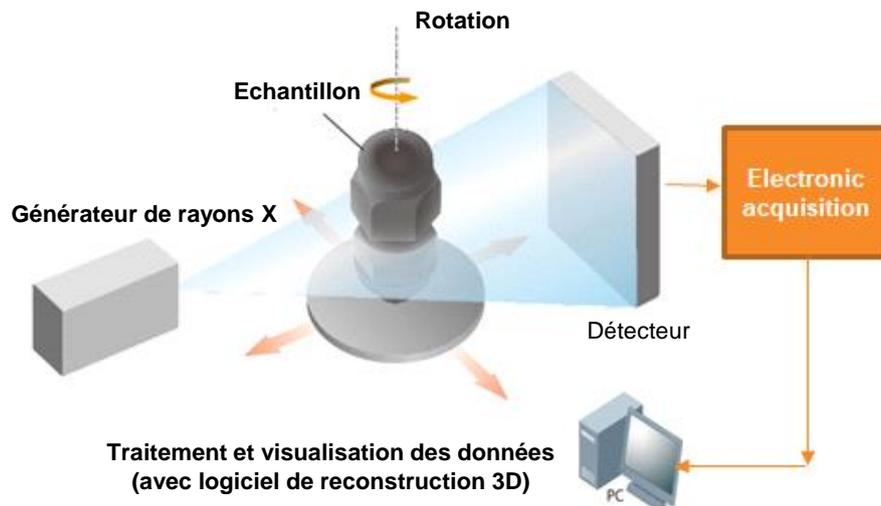


Figure III-5 : Le principe de la micro-tomographie aux rayons X.

La loi de Beer-Lambert confirme que l'intensité du faisceau de rayons X transmis est liée à l'intégrale du coefficient d'atténuation de masse  $\mu$  sur la longueur du chemin optique traversé par le faisceau comme suit (Équation (III-3)) [9, 10]:

$$\int_0^l \mu \rho dx = -\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (\text{III-3})$$

Où  $I$  et  $I_0$  sont l'intensité des faisceaux de rayons X incidents et transmis, respectivement.  $l$  (cm) est la longueur du chemin optique dans l'objet.  $\mu$  ( $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) et  $\rho$  ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) sont respectivement le coefficient d'atténuation de masse et la masse volumique du matériau.

Lors des mesures tomographiques, l'échantillon tourne lentement autour de son axe vertical, tandis que le générateur de rayons X et le détecteur restent fixes. L'échantillon à analyser est placé sur le plateau de rotation et les acquisitions radiographiques 2D de cet échantillon sont enregistrées sur une rotation de 360°. Un algorithme classique de rétroprojection est utilisé pour reconstruire les images 2D des coupes transversales. Les sections transversales 2D reconstruites sont empilées pour fournir une carte d'atténuation des rayons X en 3D de l'échantillon.

### 3.2.2. Description du micro-tomographe utilisé

Le système utilisé dans ce travail est un appareil de micro-tomographie à rayons X à haute

énergie (General Electric Phoenix V/TOME/X/M 240/280) (Figure III-6). Le générateur émet des rayons X à une tension comprise entre 20 et 240 kV avec un courant entre 2 et 8 mA, soit à une puissance maximale de 320 W. Un détecteur 2D de 2000×2000 pixels est associé à une caméra à rayons X 8 bits d'une résolution spatiale de 100  $\mu\text{m}$ .



Figure III-6 : Photo de l'appareil de micro-tomographie aux rayons X au CEA/DES/ISAS/DPC/SECR/LECBA.

### 3.2.3. Paramètres d'acquisition et de reconstruction

Dans notre configuration, la taille du pixel est de 24,7  $\mu\text{m}$ . Elle est essentiellement donnée par la distance entre le générateur de rayons X et l'objet, ainsi que la taille de l'objet qui détermine la résolution maximale que nous pourrions obtenir. La source étant supposée quasi ponctuelle, nous paramétrons le tube source d'électrons de telle sorte que la taille de la zone d'émission soit inférieure ou égale à la taille du pixel ( $\leq 24,7 \mu\text{m}$  dans notre cas). Notons que la taille de la zone d'émission dépend de la puissance d'émission du tube. Ainsi, pour définir la taille de la zone d'émission, nous devons obtenir une puissance égale à 24,7 W. Les scans sont donc effectués à 190 kV et 130  $\mu\text{A}$  ou 24,7 W avec un filtrage de faisceau (un filtre de cuivre de 0,3 mm d'épaisseur). Le filtrage du faisceau permet d'éliminer les photons à faible énergie qui provoquent des artefacts de durcissement du faisceau dans les images reconstruites [11]. Les

projections sont obtenues à partir de 3 images moyennées acquises à un temps d'acquisition de 0,3 s. L'incrément angulaire de rotation choisi est de  $0,288^\circ$ , soit 2500 projections par échantillon.

#### *3.2.4. Analyse des niveaux de gris*

Les images tridimensionnelles sont traitées et analysées à l'aide du logiciel 'VGSTUDIO'. Le traitement des images obtenues donne accès au volume de l'échantillon, à sa hauteur et à son rayon, ainsi qu'à sa surface d'échange avec l'environnement extérieur. Il est également possible de déterminer la macroporosité et le volume rétréci de l'échantillon grâce au traitement des images. L'étape de traitement d'image nécessaire pour acquérir toutes ces données est détaillée dans l'annexe A.

La détermination de l'intensité des niveaux de gris des images reconstruites est également possible par traitement d'image. Dans ce travail, nous nous intéressons également à l'étude de l'évolution des profils de teneur en eau pendant le séchage le long de la hauteur et du rayon de la boue. Chaque partie des images reconstruites peut être considérée comme un mélange de solide, d'eau et de gaz dont le niveau de gris dépend du coefficient d'atténuation massique du mélange. Il est donc possible de déterminer la teneur en eau d'un échantillon à partir des valeurs du niveau de gris grâce à une étape de calibrage.

Grâce à l'outil d'analyse des niveaux de gris du logiciel 'VGSTUDIO', le niveau de gris global ainsi que son évolution dans la direction de l'axe du cylindre ont pu être déterminés pour chaque échantillon testé. Quant à l'évolution du niveau de gris dans la direction radiale, la méthode du cylindre creux est appliquée. Cette méthode consiste à créer des cylindres creux de 2 mm d'épaisseur à différents rayons du centre de l'échantillon (Figure III-7). Le cylindre creux doit inclure la totalité de la hauteur de l'échantillon. Le premier cylindre dessiné est celui qui coïncide avec la périphérie de l'échantillon. Une intersection est faite entre l'objet (échantillon) et chaque cylindre creux. Ensuite, la valeur moyenne du niveau de gris est déterminée dans

cette intersection. Cette valeur moyenne représente la valeur du niveau de gris de l'échantillon au rayon moyen  $r$  du cylindre creux déterminé comme suit (Équation (III-4)) :

$$r = \frac{r_1 + r_2}{2} \quad (\text{III-4})$$

Où  $r_1$  et  $r_2$  sont respectivement le rayon intérieur et extérieur du cylindre creux.

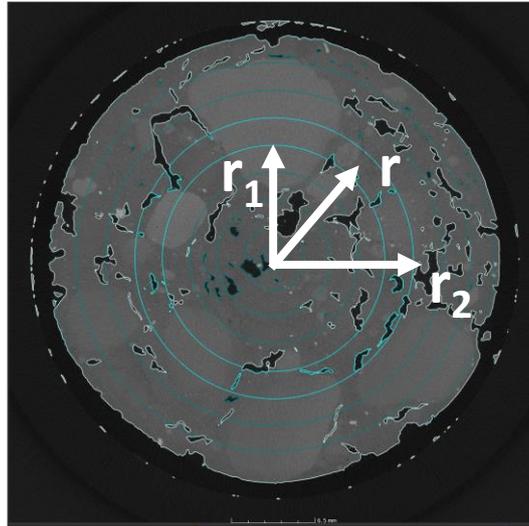


Figure III-7 : Application de la méthode des cylindres creux.

### 3.2.5. Détermination du retrait et de la teneur en eau à partir du niveau de gris

L'interprétation de l'intensité des niveaux de gris des images reconstituées permet de retrouver la valeur de la teneur en eau des échantillons testés. En effet, l'intensité du niveau de gris enregistrée pour chaque boue humide dépend de l'absorbance des rayons X et varie en fonction de la teneur en eau, comme le montre les équations suivantes :

$$\ln\left(\frac{I_0}{I}\right)_{wet\ sludge} = \mu_{wet\ sludge} \times \rho_{wet\ sludge} \times l_{wet\ sludge} \quad (\text{III-5})$$

$$\begin{aligned} \mu_{wet\ sludge} \times \rho_{wet\ sludge} \times l_{wet\ sludge} \\ = \mu_{dry\ sludge} \times \rho_{dry\ sludge} \times l_{dry\ sludge} + \mu_{liquid} \times \rho_{liquid} \times l_{liquid} \end{aligned} \quad (\text{III-6})$$

Avec  $\mu$  le coefficient d'atténuation de masse ( $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ),  $\rho$  la masse volumique ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) et  $l$  la longueur du chemin optique d'un composant traversé par le faisceau de rayons X (cm).

La conversion de l'intensité du niveau de gris en teneur en eau nécessite ensuite de connaître

les coefficients d'atténuation de masse des boues sèches et des solutions (liquide), leurs masses volumiques et la longueur du chemin optique de chaque composant traversé par le faisceau de rayons X. Le coefficient d'atténuation massique et la masse volumique des boues sèches (à l'état solide) sont calculés sur la base de la composition chimique. De même, le coefficient d'atténuation massique et la masse volumique de la solution sont calculés en fonction de la concentration en sel. Le paramètre  $l_{wet\ sludge}$  est déterminé par traitement d'image et correspond au diamètre de l'échantillon ( $d_{eq}$ ). La masse volumique de la boue humide est le rapport du poids de l'échantillon sur son volume déterminé par traitement d'image. Ainsi, les paramètres inconnus sont le coefficient d'atténuation massique de la boue humide et les longueurs des chemins optiques de la boue sèche et de la solution.

Par conséquent, le paramètre essentiel qui est nécessaire pour déterminer les fractions de chaque phase est le coefficient d'atténuation massique de la boue humide ( $\mu_{wet\ sludge}$ ). À cette fin, le rapport entre l'intensité émise et l'intensité transmise du faisceau de rayons X  $\ln(\frac{I}{I_0})_{wet\ sludge}$  est nécessaire pour chaque mesure. En tenant compte des paramètres et de la géométrie invariables des pots contenant les échantillons de boue, un étalonnage est effectué sur ce composant pour convertir le niveau de gris en un rapport entre l'intensité émise et l'intensité transmise du faisceau de rayons X ( $\ln(\frac{I}{I_0})_{pot}$ ). Ce dernier est déterminé sur la base de la loi de Beer-Lambert comme suit :

$$\ln(\frac{I}{I_0})_{pot} = \rho_{pot} \times \mu_{pot} \times l_{pot} \times f \quad (III-7)$$

Où  $\rho_{pot} = 1,015$  (g. cm<sup>-3</sup>),  $\mu_{pot} = 0,121$  (cm<sup>2</sup>. g<sup>-1</sup>) et  $l_{pot}$  (cm) sont respectivement la masse volumique, le coefficient d'atténuation massique et la longueur du chemin optique du pot contenant la boue. ' $f$ ' est un coefficient de pondération qui tient compte des légères différences de rayon de pot entre les échantillons testés.

Le rapport entre l'intensité émise et l'intensité transmise du faisceau de rayons X, provenant de

l'échantillon de boue ( $\ln(\frac{I}{I_0})_{wet\ sludge}$ ) est ensuite déterminé à partir de celui du pot, en supposant une relation proportionnelle entre leurs niveaux de gris comme suit :

$$\ln(\frac{I}{I_0})_{wet\ sludge} = \ln(\frac{I}{I_0})_{pot} \times \frac{GS_{wet\ sludge}}{GS_{pot}} \quad (III-8)$$

Où  $GS_{wet\ sludge}$  et  $GS_{pot}$  sont respectivement les valeurs en niveaux de gris de l'échantillon de boue et du pot.  $GS_{wet\ sludge}$  dépend de la masse volumique et du coefficient d'atténuation de masse de la boue testée, donc varie avec la teneur en eau.

La boue humide contient une matrice solide, de l'eau et de l'air. Comme le coefficient d'atténuation massique de l'air est égal à zéro, le coefficient d'atténuation massique de la boue obtenu est donc fonction des coefficients d'atténuation massique de la matrice solide et de l'eau. En supposant que le coefficient d'atténuation massique de la boue humide peut être obtenu par une loi de mélange classique Équation (III-9), on obtient alors une relation entre la fraction massique et le coefficient d'atténuation massique de la boue humide :

$$\mu_{sludge} = w_{dry\ sludge} \times \mu_{dry\ sludge} + w_{liquid} \times \mu_{liquid} \quad (III-9)$$

$$w_{dry\ sludge} = \frac{\mu_{wet\ sludge} - \mu_{liquid}}{\mu_{dry\ sludge} - \mu_{liquid}} \quad (III-10)$$

$$w_{liquid} = \frac{\mu_{dry\ sludge} - \mu_{wet\ sludge}}{\mu_{dry\ sludge} - \mu_{liquid}} \quad (III-11)$$

Où  $w_{dry\ sludge}$  (%),  $w_{liquid}$  (%),  $\mu_{dry\ sludge} = 0,27$  ( $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) et  $\mu_{liquid}$  ( $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) sont respectivement les fractions massiques (basées sur la valeur du diamètre équivalent) et les coefficients d'atténuation massique de la boue sèche et du liquide.  $\mu_{liquid}$  est variable en raison de la dépendance de la phase liquide vis-à-vis de la concentration en sel.

Les longueurs optiques  $l_{dry\ sludge}$  et  $l_{liquid}$ , respectivement de la boue sèche et de la fraction liquide, sont alors calculées comme suit :

$$l_{dry\ sludge} = \frac{w_{dry\ sludge} \times \rho_{wet\ sludge} \times d_{eq}}{\rho_{dry\ sludge}} \quad (III-12)$$

$$l_{liquid} = \frac{w_{liquid} \times \rho_{wet\ sludge} \times d_{eq}}{\rho_{liquid}} \quad (III-13)$$

Où  $\rho_{wet\ sludge}$ ,  $\rho_{dry\ sludge}$  et  $\rho_{liquid}$  sont respectivement les masses volumiques apparentes de la boue humide, de la boue sèche et de la fraction liquide.

Les fractions volumiques respectives de la boue sèche et du liquide  $\theta_{dry\ sludge}$  et  $\theta_{liquid}$ , sont ensuite déduites des longueurs des chemins optiques comme suit :

$$\theta_{dry\ sludge} = \frac{l_{dry\ sludge}}{l_{dry\ sludge} + l_{liquid}} \quad (III-14)$$

$$\theta_{liquid} = \frac{l_{liquid}}{l_{dry\ sludge} + l_{liquid}} \quad (III-15)$$

Les fractions massiques  $w_{dry\ sludge}$  et  $w_{liquid}$  sur la base du volume total, respectivement de la boue sèche et du liquide, sont alors déterminées comme suit :

$$w_{dry\ sludge} = \theta_{dry\ sludge} \times \rho_{dry\ sludge} \quad (III-16)$$

$$w_{liquid} = \theta_{liquid} \times \rho_{liquid} \quad (III-17)$$

Par conséquent, la teneur en eau  $X$  pourrait être obtenue à partir de l'Équation suivante :

$$X = \frac{w_{liquid}}{w_{dry\ sludge}} \quad (III-18)$$

#### 4. Masse volumique apparente

L'approche expérimentale pour évaluer le retrait volumique (paragraphe 3) permet de déterminer la masse volumique apparente  $\rho_{app}$  des échantillons de boues (A et B). Des échantillons de boues A et B de  $30 \pm 0,5$  g en masse initiale sont séchés à 65 °C, à 46 % d'humidité relative et à une pression absolue de 200 et 1000 mbar. La masse volumique apparente est définie par le rapport entre la masse totale de la boue et son volume apparent total. Ces essais fournissent la masse et le volume occupé par la boue à différents stades de séchage. Les résultats sont exprimés en masse volumique apparente en fonction de la teneur en eau.

## 5. Cinétique expérimentale du séchage

La cinétique de séchage est la donnée clé pour déterminer les isothermes de désorption de l'eau, le coefficient de diffusion d'eau apparent de la boue et le terme de cinétique d'évaporation. En outre, il est important d'acquérir la cinétique dans différentes conditions opératoires (humidité relative, température et pression) pour établir les relations de dépendance entre le coefficient de diffusion, le taux d'évaporation et les conditions opératoires.

### 5.1. Montage expérimental

Deux dispositifs expérimentaux ont été mis en place afin de déterminer la cinétique de séchage dans différentes conditions opératoires (température, humidité relative et pression), compte tenu des contraintes imposées par le séchage sous vide.

A la pression atmosphérique, un montage expérimental est mis en place pour accéder à la perte de masse d'un échantillon de boue au cours du temps dans des conditions de température / humidité relative contrôlées et constantes jusqu'à ce que l'équilibre soit atteint. Chaque échantillon de  $30 \pm 0,5$  g est suspendu à une balance digitale (AG204, Mettler Toledo, Inc., Hightstown, NJ) et confiné dans un dessiccateur avec une humidité relative imposée par une solution saline saturée. Ce dessiccateur est placé dans une étuve à une température constante variant entre 35 et 65 °C. La masse mesurée par la balance est enregistrée en continu à l'aide d'un programme Labview (Figure III-8). Un capteur (E-USB1) est placé à l'intérieur du dessiccateur pour enregistrer les variations de température et d'humidité relative pendant le séchage des boues. Le séchage est arrêté lorsque la boue atteint une teneur en eau d'équilibre  $X_e$ , de sorte que la variation de poids est inférieure à 0,01 g pendant des heures.

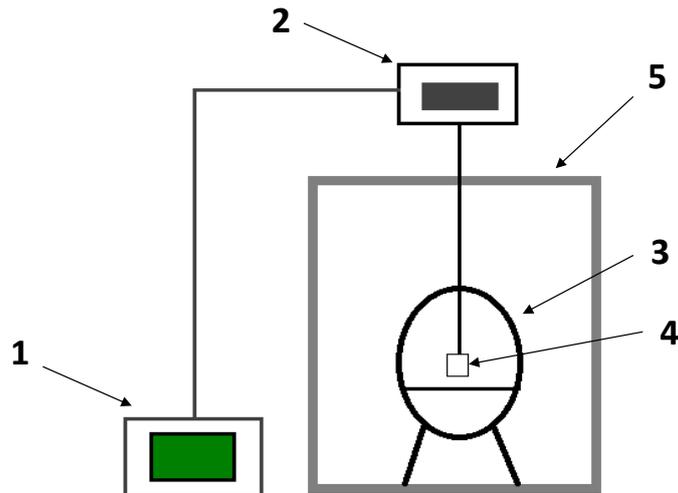


Figure III-8 : Montage expérimental pour la cinétique de séchage des boues. (1) Panneau de commande ; (2) Balance digitale ; (3) Dessiccateur; (4) Porte-échantillon ; (5) Étuve de séchage.

La cinétique de séchage sous vide partiel est établie par une pesée discontinue de l'échantillon en raison de l'instabilité de la balance à l'intérieur de l'étuve due au pompage. Les échantillons sont séchés dans une étuve sous vide partiel (Heraeus vacutherm - VT 6130m), où le vide partiel est maintenu constant par une pompe (Adixen, Pascal 2015 SD) reliée au système de contrôle de la pression de l'étuve. Les échantillons sont périodiquement retirés, pesés puis replacés dans l'étuve. Le séchage est arrêté lorsque la boue atteint une teneur en eau d'équilibre  $X_e$  et que la variation de poids est inférieure à 0,01 g pendant des heures (après plusieurs pesées discontinues). Une fois l'équilibre atteint, l'échantillon est définitivement retiré du dessiccateur, pesé puis exposé à l'azote pendant 2 semaines afin de déterminer sa masse sèche  $m_d$ . La teneur en eau de chaque échantillon est ensuite déterminée à l'aide de l'Équation (III-19).

$$X = \frac{m_t - m_d}{m_d} \quad (\text{III-19})$$

La teneur en eau à l'équilibre pour chaque échantillon est également déterminée à l'aide de la même équation mais appliquée à la masse de l'échantillon à l'équilibre  $m_e$  (Équation (III-20)).

$$X_e = \frac{m_e - m_d}{m_d} \quad (\text{III-20})$$

## 5.2. Conditions expérimentales

La cinétique de séchage est acquise dans des conditions opératoires constantes et contrôlées. Trois séries d'expériences sont réalisées pour étudier l'effet de chaque condition opératoire sur le processus de séchage de la boue A. La première série correspond à l'étude de l'effet de l'humidité relative : plus de quinze échantillons ( $30 \pm 0,5$  g) sont séchés à  $65^\circ\text{C}$  et 1000 mbar avec différentes humidités relatives imposées par des solutions salines saturées (LiCl,  $\text{MgCl}_2$ ,  $\text{K}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ , SrCl,  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , NaCl, KI,  $\text{NaNO}_3$  et KCl). Ces sels permettent de couvrir une large gamme d'humidité relative de 20 à 95 %, comme le rapportent de nombreux auteurs [12–15]. Le second ensemble correspond à l'étude de l'effet de la température : plus de cinq échantillons ( $30 \pm 0,5$  g) sont séchés à différentes températures variant de  $35$  à  $65^\circ\text{C}$ , sous pression atmosphérique et une humidité relative de 46 % (correspondant à une solution saline de  $\text{MgCl}_2$ ). La troisième série d'expériences correspond à l'étude de l'effet du vide : des échantillons de  $30 \pm 0,5$  g sont séchés à trois pressions absolues variables (200, 350 et 1000 mbar), à  $65^\circ\text{C}$  et à une humidité relative de 46 %. Trois échantillons de boue sont utilisés à chaque essai de pression sous vide absolu, afin de réduire la perturbation sur les mécanismes de séchage des échantillons en raison du protocole de pesée discontinue.

## 5.3. Isotherme de désorption d'eau

La méthode gravimétrique statique est utilisée pour déterminer l'isotherme de désorption de l'eau de la boue A à  $65^\circ\text{C}$  et à la pression atmosphérique [16]. Elle coïncide avec la première série d'expériences qui consiste à placer l'échantillon dans un environnement à humidité relative/ température contrôlée, jusqu'à atteindre l'équilibre. En effet, à la fin de chaque cinétique de séchage de la première série, la teneur en eau à l'équilibre est mesurée et l'humidité relative du milieu est enregistrée. Ces données définissent l'isotherme de désorption de l'eau à

65 °C et à la pression atmosphérique. Dans un deuxième temps, pour mettre en équation l'évolution de l'activité d'eau (ou humidité relative du milieu) en fonction de la teneur en eau à l'équilibre, représentée par l'isotherme de sorption établie, quatre équations empiriques largement utilisées dans la littérature sont proposées dans le Tableau III-2 [16–18].

Tableau III-2 : Application d'équations empiriques pour modéliser les isothermes de sorption de l'eau.

Modèle	Expression du modèle
Oswin	$X_e = A \left( \frac{a_w}{1 - a_w} \right)^B$
Halsey	$X_e = \left( \frac{A}{-\ln(a_w)} \right)^B$
Henderson	$X_e = \left( \frac{-\ln(1 - a_w)}{A} \right)^B$
Peleg	$X_e = A a_w^B$

Le modèle approprié est choisi en fonction du meilleur ajustement des équations sur l'isotherme de désorption de l'eau, en se basant sur le coefficient de détermination ( $R^2$  - Équation (III-21)) et l'erreur quadratique moyenne ( $RMSE$  - Équation (III-22)) :

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (P_{exp,i} - P_{pre,i})^2}{\sum_{i=1}^N (\bar{P}_{exp} - P_{pre,i})^2} \quad (III-21)$$

$$RMSE = \left[ \frac{\sum_{i=1}^N (P_{exp,i} - P_{pre,i})^2}{N} \right]^{0,5} \quad (III-22)$$

## 6. Détermination du coefficient de diffusion d'eau apparent : Résolution numérique de l'équation de Richard

Comme indiqué dans les travaux précédents, la diffusivité d'eau apparente  $D_{app}(X,T)$  est supposée dépendante de la teneur en eau et de la température [20, 21]. La diffusivité d'eau apparente dans la boue est alors déterminée en fonction de ces deux paramètres.  $D_{app}$  est déduite des cinétiques de séchage expérimentales (boue A) en fonction de la teneur en eau et de la température.

Le transfert de masse est mathématiquement exprimé par l'équation de diffusion de Richard (Équation (III-23)) incluant le coefficient de retrait  $\beta$  et une diffusivité d'eau apparente  $D_{app}(X,T)$  qui intègre tous les mécanismes de transfert d'humidité [22]:

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{D_{app}(X,T)}{\left(1 + \beta \frac{X}{X_0}\right)^2} \frac{\partial X}{\partial x} \right) \quad (\text{III-23})$$

Le côté gauche de l'équation représente les vitesses de séchage des boues, elles sont établies à partir de la cinétique de séchage acquise expérimentalement. Les vitesses de séchage ( $\partial X/\partial t$ ) sont calculées par approximation des dérivés à différences finies sur la base des équations suivantes :

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{X_1 - X_0}{t_1 - t_0} \quad \text{A l'instant initial } t_0 \quad (\text{III-24})$$

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{X_n - X_{n-1}}{t_n - t_{n-1}} \quad \text{A l'instant final du séchage } t_n \quad (\text{III-25})$$

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{1}{2} \left( \frac{X_i - X_{i-1}}{t_i - t_{i-1}} + \frac{X_{i+1} - X_i}{t_{i+1} - t_i} \right) \quad \text{A chaque instant } t_i \text{ pour } i \text{ entre } 1 \text{ et } n-1 \quad (\text{III-26})$$

Afin de déterminer la diffusivité d'eau apparente, un code numérique est créé pour résoudre l'équation de transfert de masse basée sur la méthode du problème inverse.

### 6.1. Hypothèses du modèle

La géométrie cylindrique de l'échantillon de boue est supposée être décrite par une géométrie de plaque dans la méthode de résolution, puisque le transfert d'humidité et le retrait sont supposés se produire uniquement axialement. Les autres hypothèses sont les suivantes :

- La distribution initiale de la teneur en eau à l'intérieur de la boue est uniforme.
- La boue est supposée isotherme en raison de la petite taille de l'échantillon. La température à l'intérieur de la boue est donc supposée uniforme et égale à la température extérieure.

- La distribution de la teneur en eau dans la boue n'est pas uniforme dans le temps. Ainsi, la boue est considérée comme un maillage d'éléments finis, chacun ayant une diffusivité d'eau apparente locale qui varie en fonction de la teneur en eau et de la température locales.

## 6.2. Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales et aux limites utilisées sont listées dans le Tableau III-3. La distribution initiale de la teneur en eau à l'intérieur de la boue est supposée être uniforme. Comme le séchage est effectué sur de petits échantillons de boue ( $30 \pm 0,5$  g) par rapport au volume du dessiccateur, on suppose que la surface extérieure de la boue ( $x=x_0$ ) est en équilibre avec l'environnement.

Tableau III-3 : Conditions initiales et aux limites du code numérique.

<i>Temps</i>	<i>Coordonnées</i>	<i>Condition</i>
$t = 0$	$0 \leq x < x_0$	$X = X_0$
$t \geq 0$	$x = x_0$	$X = X_e$
$t > 0$	$x = 0$	$\frac{\partial X}{\partial x} = 0$

## 6.3. Méthode de résolution

Afin de déterminer la diffusivité d'eau apparente, un code numérique est créé pour résoudre l'Équation (III-23) basée sur la méthode du problème inverse. La solution numérique du modèle proposé (Équation (III-23)) est basée sur la discrétisation spatiale de la géométrie avec intégration temporelle implicite développée par Skeel et Berzins [23]. Comme la diffusion et le retrait de l'eau sont considérés comme un phénomène 1D, la méthode de résolution considère que l'échantillon de boue cylindrique est une plaque qui occupe l'espace  $0 < x < x_0$ . L'espace et le temps sont successivement divisés en pas d'espace  $\Delta x$  et pas de temps  $\Delta t$ . En outre, le coefficient de retrait  $\beta$  inséré dans le code, représente l'effet du phénomène de retrait du volume global. Chaque nœud fictif  $(x, t)$  a les coordonnées  $(i\Delta x, j\Delta t)$  et la teneur en eau locale  $X(i, j)$ , où  $i$  et  $j$  sont des nombres entiers.

L'optimisation de la solution se fait en minimisant la différence entre la courbe de séchage expérimentale et la courbe simulée. Tout d'abord, une valeur initiale de la diffusivité d'eau  $D_0 = 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  est définie à partir de la littérature [20, 21, 24]. Comme indiqué dans l'organigramme (Figure III-9), la résolution commence avec la teneur en eau initiale  $X_0$  et la diffusivité d'eau initiale  $D_0$ . Ensuite, le code détermine toutes les teneurs en eau locales  $X(i, j)$  de tous les éléments finis, puis calcule leur moyenne  $X_{sim}$  après un pas de temps. La valeur simulée  $X_{sim}$  est alors comparée à la teneur en eau expérimentale  $X_{exp}$  au même pas de temps. Le critère d'accord est  $|X_{sim} - X_{exp}| < 10^{-3}$ . Si le critère est satisfait, les résultats sont stockés. Sinon, une nouvelle valeur de diffusivité d'eau est alors appliquée en fonction de la valeur simulée obtenue  $X_{sim}$  : lorsque  $X_{sim} - X_{exp} > 0$ , la valeur  $1,005 \times D_0$  est utilisée ; lorsque  $X_{sim} - X_{exp} < 0$ , la valeur  $0,995 \times D_0$  est utilisée. Cette boucle est répétée jusqu'à ce que le critère soit rempli. La dernière valeur de la diffusivité d'eau est mémorisée et utilisée comme valeur initiale de la diffusivité d'eau  $D_0$  pour l'étape de calcul suivante. La teneur en eau initiale de l'étape suivante est fixée à la moyenne des valeurs de teneur en eau simulées  $X_{sim}$ . Les calculs sont poursuivis jusqu'à la fin de la cinétique de séchage expérimentale lorsque le temps  $t_{end}$  est atteint.

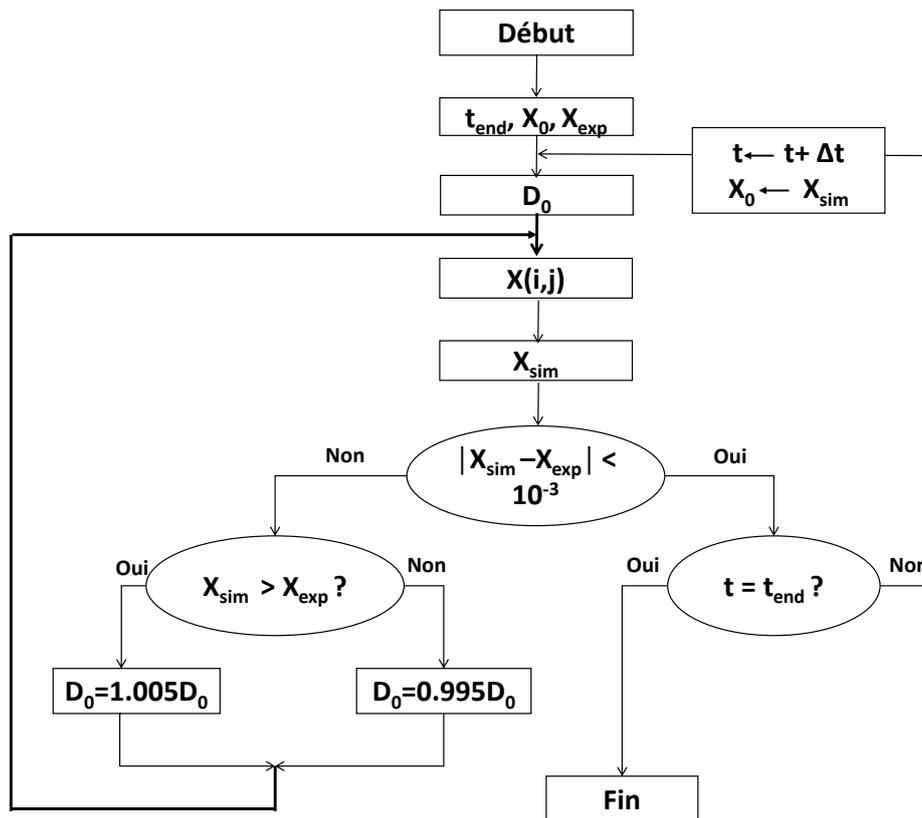


Figure III-9 : Organigramme du code de détermination du coefficient de diffusion apparent, basé sur la cinétique expérimentale de séchage.

## 7. Conclusions

Les méthodes utilisées pour le travail de caractérisation des boues sont présentées dans ce chapitre. La conductivité thermique effective, la capacité calorifique, le phénomène de retrait, la masse volumique apparente, la diffusivité d'eau apparente et l'activité de l'eau doivent être déterminés en fonction de la teneur en eau et de la température. Ces caractéristiques seront utilisées comme données d'entrée pour le modèle numérique de séchage des boues. Dans le prochain chapitre, les résultats obtenus avec ce travail de caractérisation seront présentés. L'évolution des paramètres au cours du séchage des boues sera discutée.

## Références

- [1] Kohout, M.; Collier, A. P.; Štěpánek, F. Effective Thermal Conductivity of Wet Particle Assemblies. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2004**, *47* (25), 5565–5574. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.07.031>.
- [2] Yang, I.; Kim, D.; Lee, S. Construction and Preliminary Testing of a Guarded Hot Plate Apparatus for Thermal Conductivity Measurements at High Temperatures. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2018**, *122*, 1343–1352. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.02.072>.
- [3] Y. A Çengel. *Heat Transfer: A Practical Approach*; New York: McGraw-Hill., **2004**; Vol. 2.
- [4] Blumm, J.; Lindemann, A.; Meyer, M.; Strasser, C. Characterization of PTFE Using Advanced Thermal Analysis Techniques. *International Journal of Thermophysics*, **2010**, *31* (10), 1919–1927. <https://doi.org/10.1007/s10765-008-0512-z>.
- [5] Fang, J.; Huang, Y.; Lew, C. M.; Yan, Y.; Pilon, L. Temperature Dependent Thermal Conductivity of Pure Silica MEL and MFI Zeolite Thin Films. *Journal of Applied Physics*, **2012**, *111* (5), 054910. <https://doi.org/10.1063/1.3692754>.
- [6] Atabani, A. E.; Shobana, S.; Mohammed, M. N.; Uğuz, G.; Kumar, G.; Arvindnarayan, S.; Aslam, M.; Al-Muhtaseb, A. H. Integrated Valorization of Waste Cooking Oil and Spent Coffee Grounds for Biodiesel Production: Blending with Higher Alcohols, FT–IR, TGA, DSC and NMR Characterizations. *Fuel*, **2019**, *244*, 419–430. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2019.01.169>.
- [7] Groenewoud, W. M. Differential Scanning Calorimetry. In *Characterisation of Polymers by Thermal Analysis*; Elsevier, **2001**; pp 10–60. <https://doi.org/10.1016/B978-044450604-7/50002-9>.
- [8] Chemkhi, S.; Zagrouba, F.; Bellagi, A. Mathematical Model for Drying of Highly Shrinkable Media. *Drying Technology*, **2004**, *22* (5), 1023–1039. <https://doi.org/10.1081/DRT-120038578>.
- [9] Bouguer, P. Essai d'optique Sur La Gradation de La Lumière.; Paris, France, **1729**.
- [10] Beer. Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten. *Annalen der Physik und Chemie*, **1852**, *162* (5), 78–88. <https://doi.org/10.1002/andp.18521620505>.
- [11] Park, H. S.; Chung, Y. E.; Seo, J. K. Computed Tomographic Beam-Hardening Artefacts: Mathematical Characterization and Analysis. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **2015**, *373* (2043), 20140388. <https://doi.org/10.1098/rsta.2014.0388>.
- [12] Kiranoudis, C. T.; Maroulis, Z. B.; Tsami, E.; Marinos-Kouris, D. Equilibrium Moisture Content and Heat of Desorption of Some Vegetables. *Journal of Food Engineering*, **1993**, *20* (1), 55–74. [https://doi.org/10.1016/0260-8774\(93\)90019-G](https://doi.org/10.1016/0260-8774(93)90019-G).
- [13] Freire, F. B.; Pires, E. C.; Freire, J. T. Moisture Adsorption and Desorption Behavior of Sludge Powder. *Environmental Technology*, **2007**, *28* (11), 1195–1203. <https://doi.org/10.1080/09593332808618880>.
- [14] Kaya, S.; Kahyaoglu, T. Moisture Sorption and Thermodynamic Properties of Safflower Petals and Tarragon. *Journal of Food Engineering*, **2007**, *78* (2), 413–421. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2005.10.009>.
- [15] Simal, S.; Femenia, A.; Castell-Palou, Á.; Rosselló, C. Water Desorption Thermodynamic Properties of Pineapple. *Journal of Food Engineering*, **2007**, *80* (4), 1293–1301. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2006.10.001>.
- [16] Bougayr, E. H.; Lakhal, E. K.; Idlimam, A.; Lamharrar, A.; Kouhila, M.; Berroug, F. Experimental Study of Hygroscopic Equilibrium and Thermodynamic Properties of Sewage Sludge. *Applied Thermal Engineering*, **2018**, *143*, 521–531. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2018.07.048>.
- [17] Akin, A.; Özbalta, N.; Güngör, A. Equilibrium Moisture Content and Equations for Fitting Sorption Isotherms of Capsicum Annum. *The journal of food GIDA*, **2009**, *34* (4) (205–211), 8.

- [18] Bellur, S. R.; Coronella, C. J.; Vásquez, V. R. Analysis of Biosolids Equilibrium Moisture and Drying. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, **2009**, *28* (2), 291–298. <https://doi.org/10.1002/ep.10353>.
- [19] Vásquez, V. R.; Coronella, C. J. A Simple Model for Vapor-Moisture Equilibrium in Biomass Substrates. *AIChE Journal*, **2009**, *55* (6), 1595–1603. <https://doi.org/10.1002/aic.11762>.
- [20] Louarn, S.; Ploteau, J.; Glouannec, P.; Noel, H. Experimental and Numerical Study of Flat Plate Sludge Drying at Low Temperature by Convection and Direct Conduction. *Drying Technology*, **2014**, *32* (14), 1664–1674. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.916299>.
- [21] Reyes, A.; Eckholt, M.; Troncoso, F.; Efremov, G. Drying Kinetics of Sludge from a Wastewater Treatment Plant. *Drying Technology*, **2005**, *22* (9), 18.
- [22] Thuwapanichayanan, R.; Prachayawarakorn, S.; Soponronnarit, S. Modeling of Diffusion with Shrinkage and Quality Investigation of Banana Foam Mat Drying. *Drying Technology*, **2008**, *26* (11), 1326–1333. <https://doi.org/10.1080/07373930802330979>.
- [23] Skeel, R. D.; Berzins, M. A Method for the Spatial Discretization of Parabolic Equations in One Space Variable. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing*, **1990**, *11* (1), 1–32. <https://doi.org/10.1137/0911001>.
- [24] Li, J.; Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Salmon, T.; Toye, D.; Schreinemachers, R.; Léonard, A. Analysis of the Shrinkage Effect on Mass Transfer during Convective Drying of Sawdust/Sludge Mixtures. *Drying Technology*, **2014**, *32* (14), 1706–1717. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.924136>.

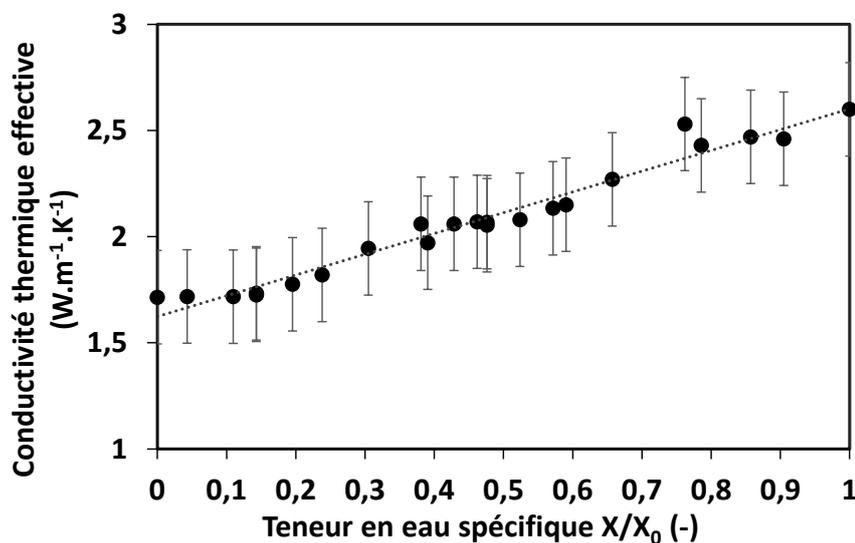
## IV. Caractéristiques intrinsèques des boues : résultats expérimentaux

Dans ce chapitre, les résultats obtenus lors de la caractérisation des boues A et B selon les méthodes détaillées au chapitre III sont présentés. L'évolution des propriétés thermo-physiques, ainsi que les propriétés mécaniques (phénomène de retrait) pendant le séchage des boues sont discutées. Ces résultats contribuent à établir des relations entre les paramètres physiques et les paramètres environnementaux (teneur en eau, humidité relative, pression, température). Les constantes et les équations résultant de ces relations seront utilisées comme données d'entrée dans les modèles numériques de séchage.

### 1. Propriétés thermiques

#### 1.1. Conductivité thermique effective

Sur la base des données de température de chaque échantillon de boue A testé, une valeur de conductivité thermique est déterminée (comme décrit au chapitre III). Comme cela est montré



dans la

Figure IV-1, la conductivité thermique effective de la boue A diminue linéairement avec la réduction de sa teneur en eau. Elle passe de  $2,60 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$  pour une boue humide ayant une teneur en eau initiale de 210 % à  $1,71 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$  pour une boue sèche.

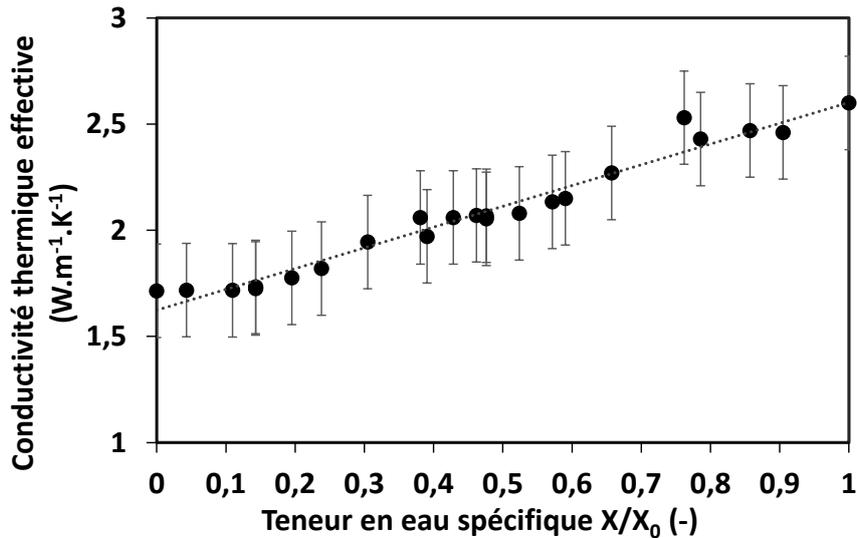


Figure IV-1 : Évolution de la conductivité thermique effective avec la teneur en eau spécifique ( $X_0 = 210 \%$ ).

La diminution de la conductivité thermique effective pendant le séchage des boues est principalement due à l'évaporation de l'eau et à son remplacement partiel par de l'air ayant une conductivité thermique plus faible. La relation entre la conductivité thermique effective et la teneur en eau des boues est établie, sur la base des données expérimentales obtenues, entre 0 et 210 % comme suit :

$$K_{eff} = 0,98 \frac{X}{X_0} + 1,62 \text{ with } X_0 = 210 \% \text{ et } R^2 = 0,96 \quad (\text{IV-1})$$

La conductivité thermique effective de la boue B entre 210 et 380 % est ensuite extrapolée sur la base de la même équation. L'évolution de la conductivité thermique effective en fonction de la teneur en eau est présentée à l'annexe B.

Les résultats expérimentaux obtenus entre 35 et 70 °C, montrent que la conductivité thermique effective ne dépend pas fortement de la température comme le mentionnent Kohout et al. [1]. Ceci est dû aux valeurs étroites et relativement faibles de la plage de températures testée. Au contraire, la conductivité thermique effective dépend de la teneur en eau de l'échantillon de boue, comme l'ont constaté d'autres auteurs [2, 3].

Un gradient de température est créé à l'intérieur de la boue, mesuré par les capteurs Pt100 insérés dans la cellule thermique à différentes hauteurs de la plaque chauffante (Figure IV-2). Ce gradient de température est différent pour chaque échantillon en fonction de la teneur en eau. La mesure de la température indique que la cellule thermique a besoin d'au moins 7 heures pour atteindre l'équilibre. Par exemple, à une teneur en eau  $X = 80\%$ , on considère que la boue A atteint l'équilibre thermique lorsque les températures mesurées par les capteurs Pt100 ne varient pas de plus de  $\pm 5\%$  pendant deux heures.

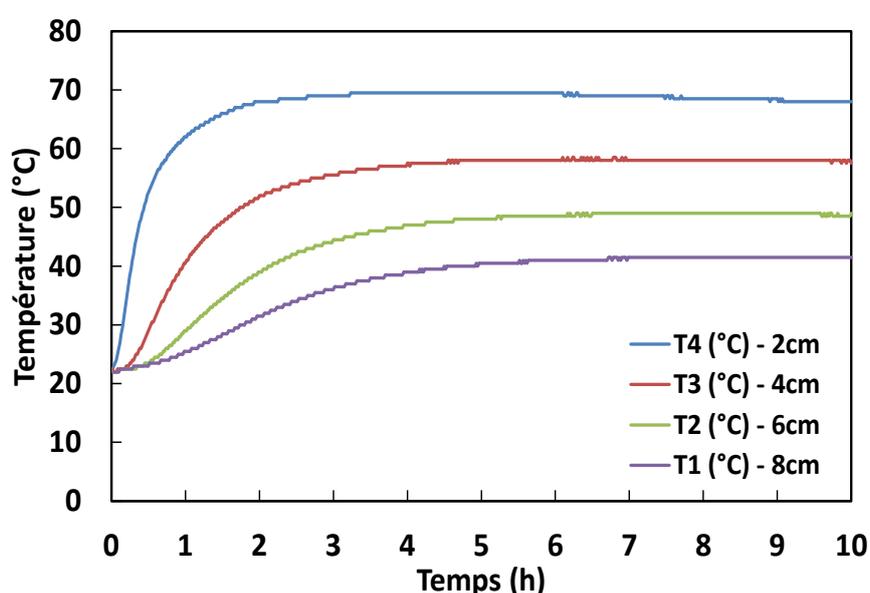


Figure IV-2 : Évolution de la température dans la cellule thermique pour un échantillon de boue A à  $X = 80\%$  (T1, T2, T3 et T4 sont respectivement à 8, 6, 4 et 2 cm de hauteur de la plaque chauffante).

## 1.2. Capacité calorifique

Les résultats obtenus par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) acquis sur la boue A entre 30 et 70 °C, montrent que la capacité calorifique ne dépend pas de la température dans notre cas (Figure IV-3a). Cela est dû aux valeurs étroites et relativement faibles de la plage de températures testée. L'effet de la température dans ce cas est négligeable par rapport à l'effet de la teneur en eau, tel que constaté par Quang et al. [4]. La Figure IV-3b montre que les résultats expérimentaux de la capacité calorifique de la boue A (points noirs) diminuent de façon

exponentielle avec la réduction de la teneur en eau de  $2,52 \text{ J. g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  pour une boue humide avec une teneur en eau initiale de 210 % à  $0,78 \text{ J. g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  pour une boue sèche. Cette diminution de la capacité calorifique avec la réduction de la teneur en eau est principalement due à l'évaporation de l'eau. Elle pourrait également être due au remplacement partiel de l'eau par de l'air ayant des propriétés thermiques plus faibles.

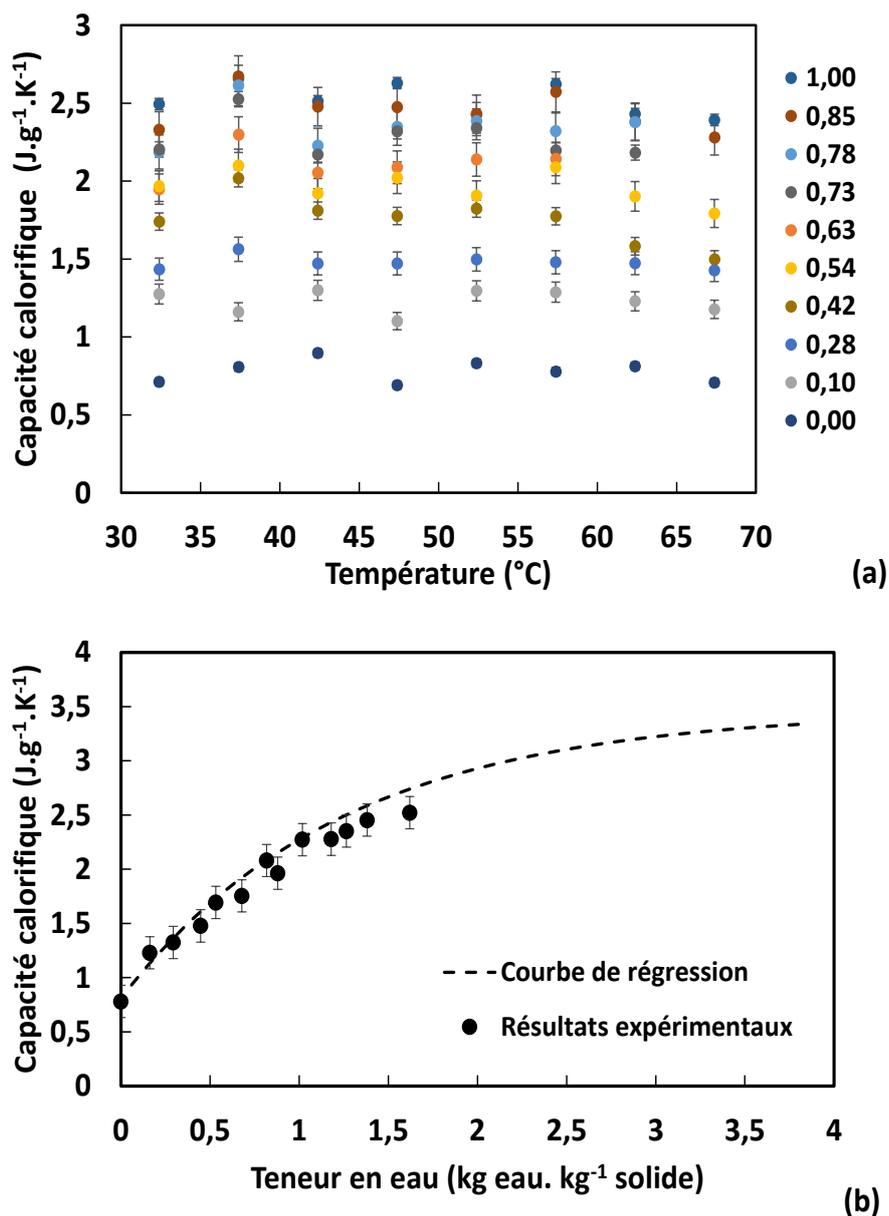


Figure IV-3 : (a) Évolution de la capacité calorifique en fonction de la température pour différentes teneurs en eau spécifiques des boues ( $X_0 = 210 \%$ ) et (b) Évolution de la capacité calorifique moyenne en fonction de la teneur en eau.

L'évolution de la capacité calorifique ne suit pas une diminution linéaire avec la teneur en eau comme on pourrait s'y attendre. Selon des travaux antérieurs [5, 6], ce comportement non linéaire peut être expliqué par la réduction de la teneur en eau combinée à l'augmentation des concentrations de sels dans la solution. Comme la capacité calorifique de la solution saline diminue de manière exponentielle avec l'augmentation de sa salinité, il semble que la diminution exponentielle de la capacité calorifique de la boue soit le résultat de la réduction de l'eau combinée à l'augmentation de sa salinité.

Afin de déterminer la capacité calorifique de la boue B entre 210 et 380 %, une équation établie par Laliberté est utilisée [5]. Elle est basée sur une loi d'additivité des capacités thermiques des composants actuels. Elle prend en compte la variation exponentielle de la capacité calorifique de la solution saline par rapport à ses concentrations en sel comme suit :

$$c_p = w_s c_{ps} + w_w c_{pw} + \sum w_i c_{pi} \quad (\text{IV-2})$$

$$c_{pi} = a_{i1} e^{\alpha} + a_{i2} \left( \sum w_i \right)^{\alpha_3} \quad (\text{IV-3})$$

Où  $c_p$  est la capacité calorifique de la boue et  $w$  la fraction massique. 's', 'w' et 'i' désignent respectivement la phase solide (sels insolubles), l'eau et les sels solubles.  $a_1$ ,  $a_2$  et  $\alpha$  sont des coefficients empiriques sans dimension spécifiques à chaque sel.

Les points noirs de la Figure IV-3b représentent les résultats expérimentaux des capacités calorifiques déterminés sur la boue A ( $X_0 = 210\%$ ). Alors que, la ligne pointillée de la Figure IV-3b représente les résultats simulés des capacités calorifiques, déterminées selon la méthode de Laliberté pour la boue B ( $X_0 = 380\%$ ). Il est clair que les capacités calorifiques simulées entre 0 et 210 % sont adéquates avec les données expérimentales ( $R^2 = 0,98$ ). Cela confirme l'applicabilité de l'équation de Laliberté pour déterminer la capacité thermique de la

boue B, plus précisément entre 210 et 380 %. L'évolution de la capacité thermique en fonction de la teneur en eau est présentée dans l'annexe B. La relation entre la capacité thermique et la teneur en eau des boues est établie comme suit et est insérée dans le modèle numérique de séchage :

$$c_p = -2,66\exp(-0,81X) + 3,46 \text{ avec } R^2 = 0,98 \quad (\text{IV-4})$$

## 2. Phénomène de retrait

Des modifications structurales peuvent se produire pendant le séchage des boues, ce qui affecte le transfert de masse à l'intérieur du matériau. Cela inclut le retrait, résultant de la réduction du volume de la matière humide chauffée en raison de l'évaporation de l'eau [7]. Lorsque l'eau est éliminée, un déséquilibre de pression se produit entre l'intérieur du matériau et l'atmosphère extérieure. Cela génère des contraintes de contraction qui entraînent une fissuration occasionnelle du matériau, un retrait de volume et une réduction de la hauteur et du diamètre, comme le montrent les Figure IV-4. L'échantillon de 30 g de la boue A, ayant une teneur en eau initiale  $X_0 = 210 \%$ , a un diamètre initial  $d_0 = 3,6 \text{ cm}$  et une hauteur initiale  $h_0 = 1,8 \text{ cm}$  (Figure IV-4a, c et e). Au cours du séchage de la boue, le diamètre et la hauteur diminuent en raison des phénomènes de retrait du volume (Figure IV-4b) pour devenir, à la fin du séchage, respectivement  $d_{eq} = 1,2 \text{ cm}$  et  $h_{ave} = 1,2 \text{ cm}$  (Figure IV-4d et f). Des vides se forment pendant le séchage suite aux phénomènes de retrait. La plupart des vides créés sont, d'après l'étude micro-tomographique, liés à l'environnement extérieur. Les vides connectés à l'environnement extérieur offrent une surface d'échange supplémentaire avec le milieu environnant (Figure IV-4d et f). D'autre part, la contraction du volume conduit à densifier la matrice solide et limite la formation de porosité interne. La porosité interne est déterminée sur la base de l'étude micro-tomographique (détaillée ci-dessous), et s'avère presque négligeable. Par conséquent, le retrait contribue au transport de l'eau lors du séchage des boues, notamment avec le coefficient de retrait  $\beta$  combiné au coefficient de diffusion d'eau apparent. Ainsi, il est nécessaire de déterminer la relation entre le rapport de volume et la teneur en eau pour en déduire le

coefficient de retrait  $\beta$ . Dans les prochaines sous-parties, nous étudierons l'évolution du volume, de la hauteur, du diamètre, de la fraction volumique des gaz et des échanges de surface de la boue pendant le séchage.

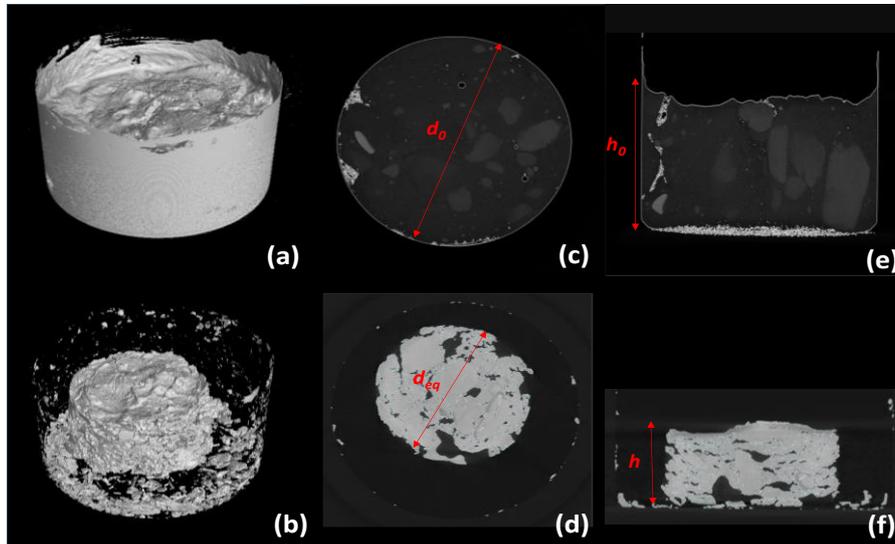


Figure IV-4 : Images 3D par tomographie aux rayons X de la boue A (a) humide et (b) sèche. Coupes transversales 2D de la boue A (c) humide et (d) sèche. Coupes verticales de la boue A (e) humide et (f) sèche.

### 2.1. Coefficient de retrait

Afin d'évaluer le coefficient de retrait des boues A et B dans les conditions de séchage sélectionnées, les réductions de volume sont mesurées à différentes teneurs en eau, sous une pression absolue de 200 et 1000 mbar. Le rapport entre les volumes et la teneur en eau spécifique des échantillons de boue de 30 g (A et B) séchés à 65 °C sous 200 et 1000 mbar et  $HR = 46\%$  est indiqué sur la Figure IV-5. Les points noirs et les losanges rouges représentent les résultats pour la boue A à 200 mbar, déterminés respectivement par la méthode de compensation de la réduction de volume et l'étude micro-tomographique aux rayons X. Les carrés verts et les triangles jaunes représentent le rapport des volumes des échantillons de boue A séchée (30 g) à la pression atmosphérique (1000 mbar), déterminés respectivement par la méthode de compensation de la réduction de volume et l'étude micro-tomographique aux rayons X. Les images micro-tomographiques aux rayons X (a), (b) et (c) représentent des sections

verticales de la boue A à des teneurs en eau spécifiques de 1 ; 0,48 et 0,04 respectivement ( $X_0 = 210 \%$ ).

Comme le montre la Figure IV 5a, les résultats obtenus à pression atmosphérique (carrés verts et triangles jaunes) suivent la même tendance que ceux acquis à 200 mbar (points noirs et losanges rouges). Cela confirme que le phénomène de retrait global n'est pas affecté par les conditions opératoires du séchage.

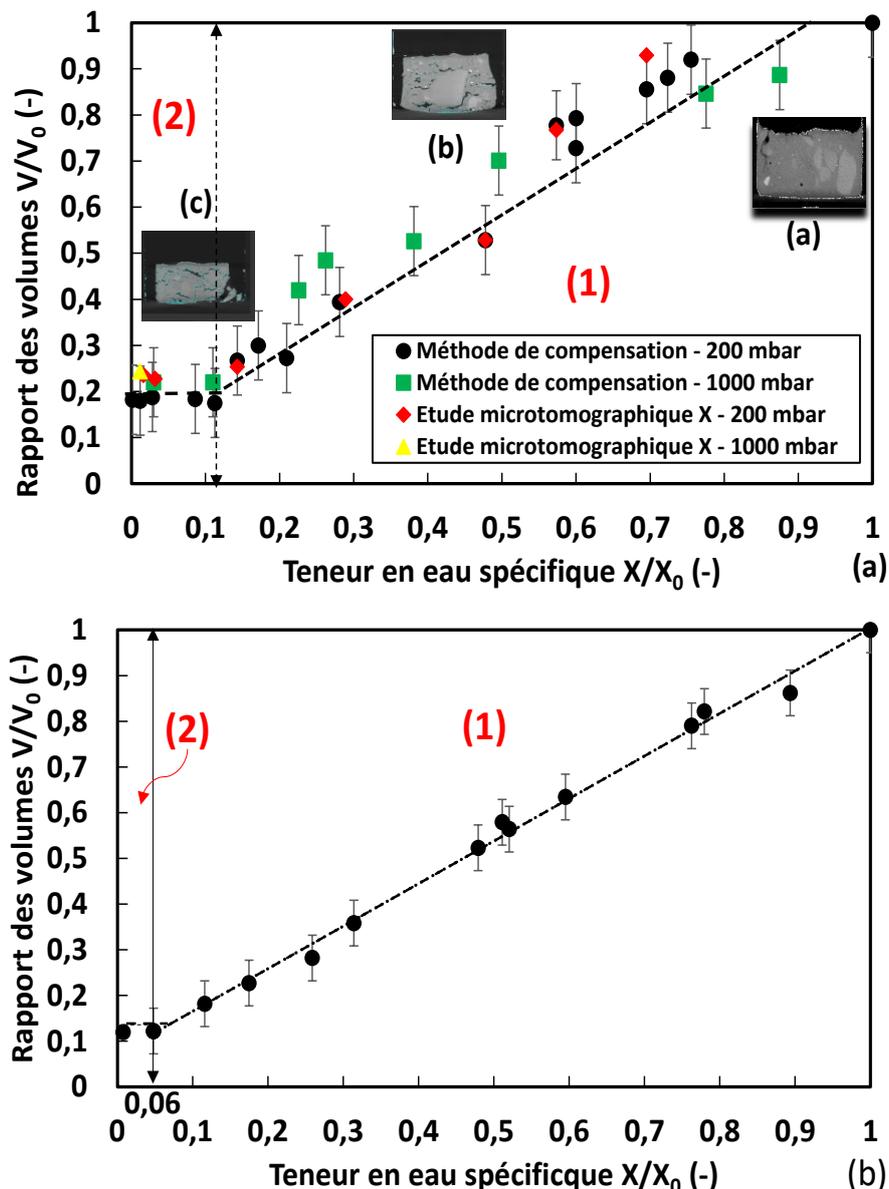


Figure IV-5 : Rapport des volumes de 30 g de boue avec la teneur en eau spécifique (a) boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) séchée à  $65 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $HR = 46 \%$  et  $P_{abs} = 200$  ou  $1000$  mbar; (b) boue B ( $X_0 = 380 \%$ ) séchée à  $65 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $HR = 46 \%$  et  $P_{abs} = 1000$  mbar.

En effet, de nombreux travaux ont montré que la température et la pression n'affectent pas le phénomène de retrait des boues, ainsi que le coefficient de retrait  $\beta$  [8, 9]. A 200 mbar et selon Ketelaars et al. [10], l'évolution du rapport des volumes est divisée en deux parties principales (1 et 2). Premièrement, la boue A se contracte linéairement (Figure IV-5a; partie 1) avec une réduction de l'eau de  $X/X_0 = 1$  ( $X_0 = 210\%$ ) jusqu'à sa teneur en eau spécifique critique  $X_{cr}/X_0 = 0,11$  ( $X_{cr} = 23\%$ ), initialement de  $V/V_0 = 1$  à  $V/V_0 = 0,22$  avec une pente égale à 1 (Equation (IV 5)). Enfin, après avoir atteint  $X_{cr}/X_0 = 0,11$ , la boue A maintient un rapport de volumes constant  $V/V_0 = 0,22$  jusqu'à la fin du séchage marqué par l'arrêt de l'évaporation de l'eau (partie 2). Ainsi, la teneur en eau spécifique critique  $X_{cr}/X_0 = 0,11$  correspondant à une teneur en eau critique  $X_{cr} = 23\%$  est la limite de retrait. Les particules solides deviennent très serrées les unes contre les autres et ne peuvent plus se rapprocher. L'évolution du rapport de volume dépend uniquement de la teneur en eau et peut être décrite mathématiquement, pour la boue A, par l'équation suivante :

$$\frac{V}{V_0} = \begin{cases} (A): \frac{X}{X_0} + 0,11 = 0,11 \left( 1 + 9,1 \frac{X}{X_0} \right); & 0,11 < \frac{X}{X_0} \leq 1 \\ (B): 0,22 & ; \quad \frac{X}{X_0} \leq 0,11 \end{cases} \quad (IV-5)$$

Ainsi, le coefficient de retrait de la première partie (1) - boue A, est de  $\beta = 9,1$  avec  $R^2 = 0,96$ . Il devient ensuite  $\beta = 0$  lorsqu'il n'y a plus de retrait en dessous de  $X/X_0 = 0,11$  dans la partie (2).

En ce qui concerne la boue B, la tendance de l'évolution du volume de retrait est similaire à celle de la boue A. La teneur en eau spécifique critique  $X_{cr}/X_0$  ( $X_0 = 380\%$ ) est réduite à 0,06 mais correspond toujours à la même teneur en eau critique que celle de la boue A :  $X_{cr} = 23\%$ . En outre, le rapport  $V/V_0$  de la boue B à  $X_{cr}/X_0$  est égal à 12 %, qui est inférieur à celui de la boue A ( $V/V_0 = 22\%$ ). Cela est principalement dû au fait que la teneur en eau initiale contenue dans la boue B ( $X_0 = 380\%$ ) est supérieure à celle de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ).

Les pentes des deux courbes (partie 1 des Figure IV-5a et b) sont presque égales (erreur relative inférieure à 9 %). Par contre, le coefficient de retrait  $\beta$  dans la boue B est de 13,3 (1,5 fois plus élevé que celui de la boue A) (Équation (IV-6)) :

$$\frac{V}{V_0} = \begin{cases} (A) : 0,93 \frac{X}{X_0} + 0,07 = 0,07 \left( 1 + 13,3 \frac{X}{X_0} \right); & 0,06 < \frac{X}{X_0} \leq 1 \\ (B) : 0,12 & ; \quad \frac{X}{X_0} \leq 0,06 \end{cases} \quad (IV-6)$$

Le coefficient de retrait  $\beta$ , ainsi déterminé expérimentalement, est introduit, lorsque le phénomène de retrait est pris en considération, dans l'équation de transport de l'eau (équation de Richard modifiée) des modèles numériques de séchage.

Il est à noter que la méthode de compensation de la réduction du volume présente une barre d'erreur plus importante que la méthode de mesure micro-tomographique par rayons X. Ceci est dû à l'erreur expérimentale : erreur de détermination initiale du niveau de boue, erreur de remplissage, erreur de lecture... Alors que pour la mesure micro-tomographique à rayons X, l'erreur est supposée être négligeable. En réalité, une erreur existe en raison des méthodes de seuillage utilisées pour déterminer la surface et distinguer la boue de l'environnement externe.

## 2.2. Évolutions du diamètre et de la hauteur

Les évolutions du diamètre (points bleus) et de la hauteur (carrés rouges) de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) avec l'évolution de la teneur en eau, sur la base de l'étude micro-tomographique aux rayons X, sont indiquées sur la Figure IV-6a. Au début du séchage de la boue A, les rapports des diamètres et des hauteurs de la boue A diminuent légèrement de  $X/X_0 = 1$  à  $X/X_0 = 0,7$  (partie a). Ensuite, le rapport des hauteurs commence à diminuer fortement avec la réduction de l'eau. Dans ces conditions, le rapport des diamètres continue à diminuer légèrement avec la réduction de l'eau jusqu'à ce que  $X/X_0 = 0,58$  (partie b). En-dessous de cette valeur, les rapports de hauteur et de diamètre continuent à diminuer fortement avec la réduction de l'eau jusqu'à ce que  $X/X_0 = 0,14$  pour atteindre  $h_{ave}/h_0 = 0,59$  et  $d_{eq}/d_0 = 0,64$  (partie c). Ensuite, les rapports de

diamètre et de hauteur des boues restent constants avec la réduction de l'eau jusqu'à la fin du séchage (partie d).

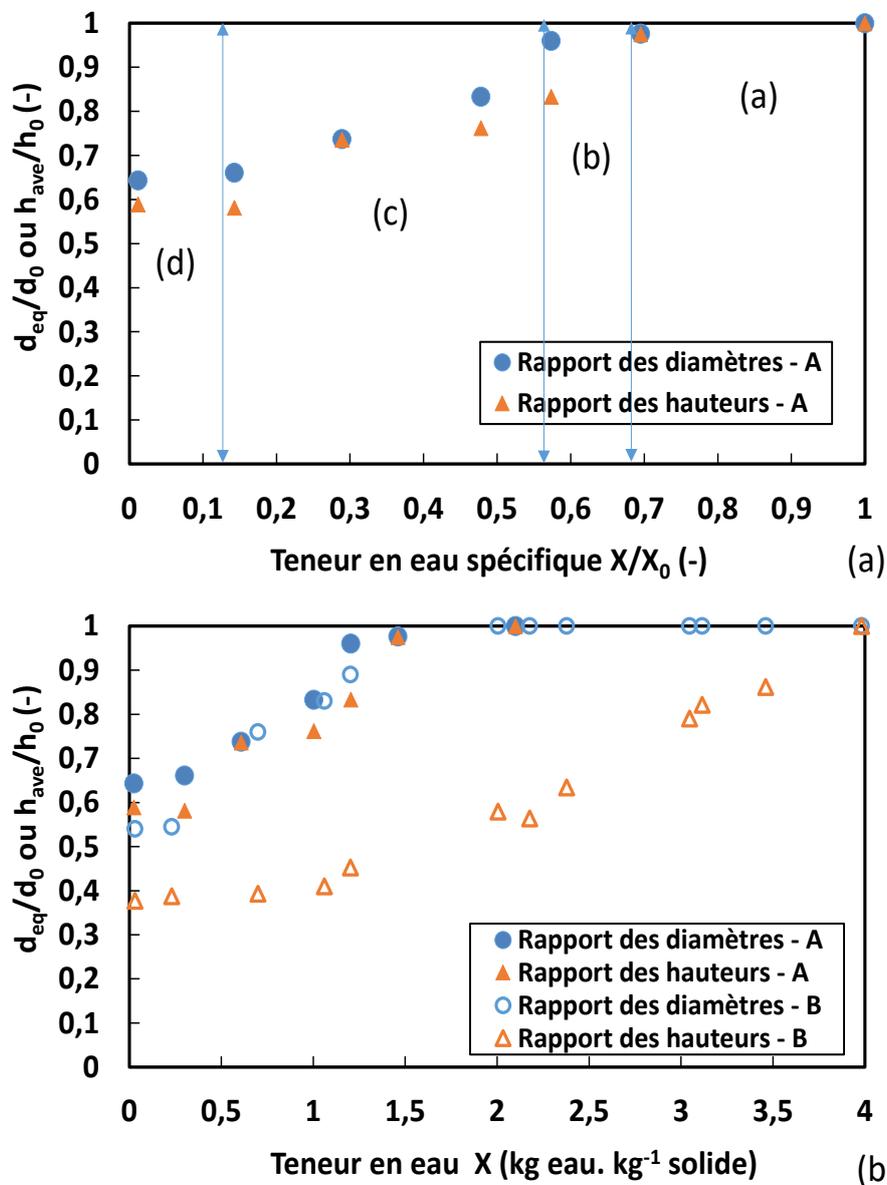


Figure IV-6 : (a) Évolution des rapports des diamètres et des hauteurs avec la teneur en eau spécifique de la boue A (30 g) séchée à 65 °C,  $HR = 46 \%$  et 200 mbar ( $X_0 = 210 \%$ ).

(b) Évolution des rapports des diamètres et des hauteurs avec la teneur en eau des boues A et B (30 g) à 65 °C,  $HR = 46 \%$  et 200 mbar.

Quant à la boue B ( $X_0 = 380 \%$ ), entre 380 et 210 %, le rapport des diamètres (cercle bleu) s'avère constant (Figure IV-6b). Par conséquent, la réduction du volume est exprimée uniquement par la réduction du rapport des hauteurs (triangle orange creux) entre 380 et 210 %. Lorsque la teneur en eau atteint 150 %, le rapport des diamètres commence à diminuer en même

temps que le rapport des hauteurs jusqu'à ce que la teneur en eau critique soit atteinte ( $X_{cr} = 23 \%$ ). En dessous de cette valeur critique, les rapports de diamètres et de hauteurs de la boue B restent constants, respectivement à  $d_{eq}/d_0 = 0,54$  et  $h_{ave}/h_0 = 0,38$ , jusqu'à la fin du séchage. Il est évident que les rapports finaux des diamètres et hauteurs de la boue B ( $X_0 = 380 \%$ ) sont inférieurs à ceux de la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ), ceci est dû à la grande teneur en eau initiale présente dans la boue B. Les évolutions des rapports des diamètres et hauteurs des boues A et B sont insérées dans les modèles numériques de séchage. Ces fonctions détermineront la déformation de la géométrie de la boue dans le modèle numérique, lorsque le retrait est pris en compte.

### 2.3. Évolutions de la fraction volumique du gaz et de la surface d'échange

L'évolution de la fraction volumique gazeuse de la boue A avec la teneur en eau est présentée sur la Figure IV-7. La fraction volumique gazeuse est déterminée en soustrayant le volume réel de la boue (solide et liquide) du volume apparent. Elle est calculée pour chaque échantillon par traitement d'image des données micro-tomographiques aux rayons X (annexe A). La fraction volumique gazeuse tend à augmenter doucement avec la réduction de l'eau de 0 % pour la boue initiale humide et saturée ( $X_0 = 210 \%$ ) à 8 % pour la boue sèche ( $X = 4 \%$ ). L'augmentation douce de la fraction volumique du gaz est due à l'évaporation de l'eau et à son remplacement partiel par l'air. Il est important de souligner que l'eau retirée n'est pas entièrement remplacée par l'air. En effet, la boue se contracte avec l'évaporation de l'eau, de sorte que la réduction globale du volume compense principalement la perte de volume d'eau et limite l'augmentation de la fraction volumique du gaz pendant l'évaporation de l'eau. Par conséquent, la boue peut être considérée comme un système à retrait maximal, où la diminution du volume de la matière est presque égale au volume de l'eau retirée [10]. Le phénomène de retrait maximal, l'une des hypothèses utilisées dans l'équation du transport de l'eau avec le retrait, est donc vérifié expérimentalement.

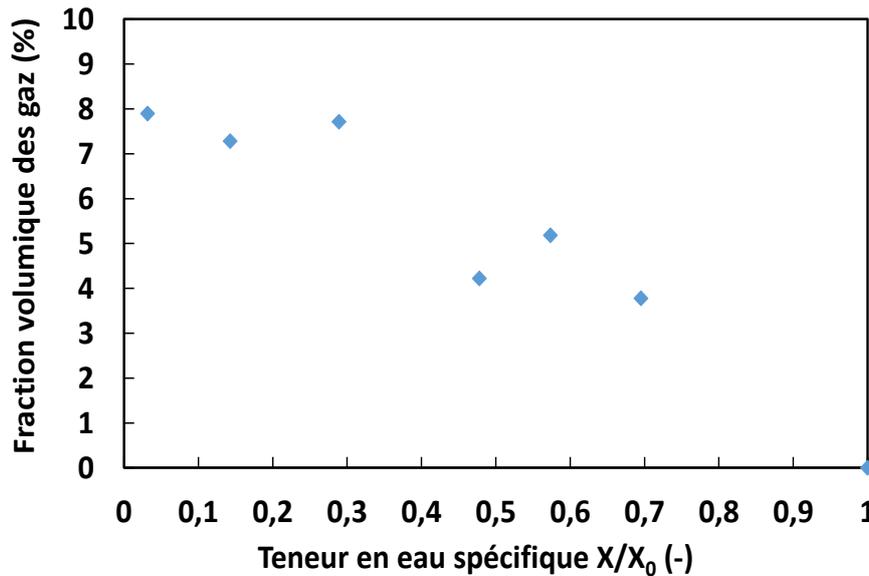


Figure IV-7 : Évolution de la fraction volumique des gaz avec la teneur en eau spécifique de la boue A (30 g) séchée à 65 °C,  $HR = 46 \%$  et 200 mbar.

La Figure IV-8 montre l'évolution du rapport des surfaces d'échange de l'échantillon de 30 g de la boue A pendant le séchage à 200 mbar, 65 °C et  $HR = 46 \%$ . La surface d'échange initiale est limitée à la surface supérieure du cylindre de boue. Le rapport des surfaces d'échange  $A/A_0$  est initialement égal à 1, il reste constant tant que le diamètre de la boue est toujours égal à sa valeur initiale. Par la suite, lorsque le diamètre de la boue est réduit en raison du retrait, une surface d'échange supplémentaire est créée à partir de la surface latérale (partie 1). Par conséquent, le rapport des surfaces d'échange augmente jusqu'à un maximum de  $A/A_0 = 15$  pour  $X/X_0 = 0,7$ , ce qui favorise les mécanismes de séchage. Ce maximum est obtenu lorsque la boue se détache de la paroi intérieure de son pot. Ensuite, le rapport des surfaces d'échange diminue avec la réduction de l'eau en raison de la diminution du volume de la boue, ainsi que de son diamètre et de sa hauteur (partie 2), comme l'ont montré d'autres études [11, 12]. Ce rapport diminue jusqu'à ce qu'une surface d'échange finale constante soit atteinte dès que la boue devient consolidée (partie 3). Le rapport des surfaces d'échange à la fin du retrait est  $A/A_0 = 5$ , c'est-à-dire que la surface d'échange à la fin est 5 fois plus grande que sa surface d'échange initiale. Sur la base de ces résultats, il semble important de prendre en compte le phénomène de

retrait des boues dans le modèle numérique de séchage. En effet, le phénomène de retrait n'affecte pas seulement le coefficient de diffusion d'eau apparent, mais implique également une évolution de la surface d'échange avec l'atmosphère extérieure, qui est un facteur déterminant dans la cinétique de séchage [12–14].

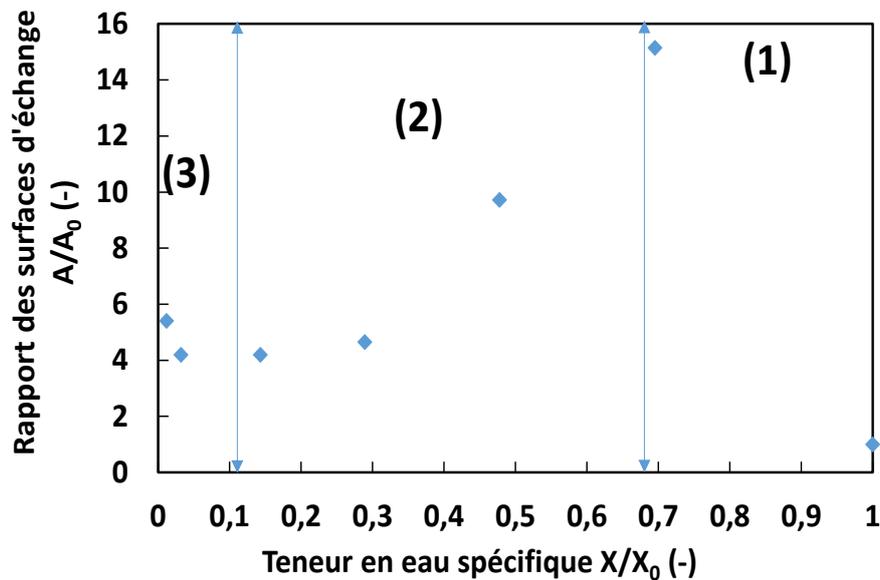


Figure IV-8 : Évolution du rapport des surfaces d'échange avec la teneur en eau spécifique de la boue A (30 g) séchée à 65 °C,  $HR = 46 \%$  et 200 mbar.

#### 2.4. Détermination et distribution spatiale de l'eau par analyse du niveau de gris

Les Figure IV-9a et b montrent les profils en niveaux de gris pour différents échantillons de la boue A exposés à différents temps de séchage, respectivement dans les directions radiale et axiale. Les niveaux de gris de chaque échantillon sont rapportés à la valeur de niveau de gris de son pot (récipient). Les niveaux de gris apparaissant sur la Figure IV-9a sont calculés en moyenne sur la hauteur des boues. L'axe d'abscisse représente la distance radiale normalisée par rapport au rayon initial de l'échantillon de boue ( $r/R_0$ ). Les niveaux de gris apparaissant sur la Figure IV-9b sont déterminés sur des centaines de sections transversales (2 pixels d'épaisseur) tout au long du volume de la boue. L'axe d'abscisse représente la distance axiale du fond normalisée à la hauteur initiale de l'échantillon de boue ( $x/h_0$ ). La tendance générale montre une augmentation du niveau de gris avec la diminution de la teneur en eau des boues, ce qui signifie

que le coefficient d'atténuation massique  $\mu$  de la boue augmente avec la siccité de la boue. Ceci reflète le fait que la matière solide de la boue est plus absorbante que l'eau liquide. Le phénomène de retrait observé expérimentalement sur des échantillons de boues est clairement visible. Les rapports de distance maximum ( $r/R_0$  et  $x/h_0$ ) pour chaque échantillon de boue diminuent avec la teneur en eau moyenne des échantillons en raison de la réduction de la hauteur et du rayon.

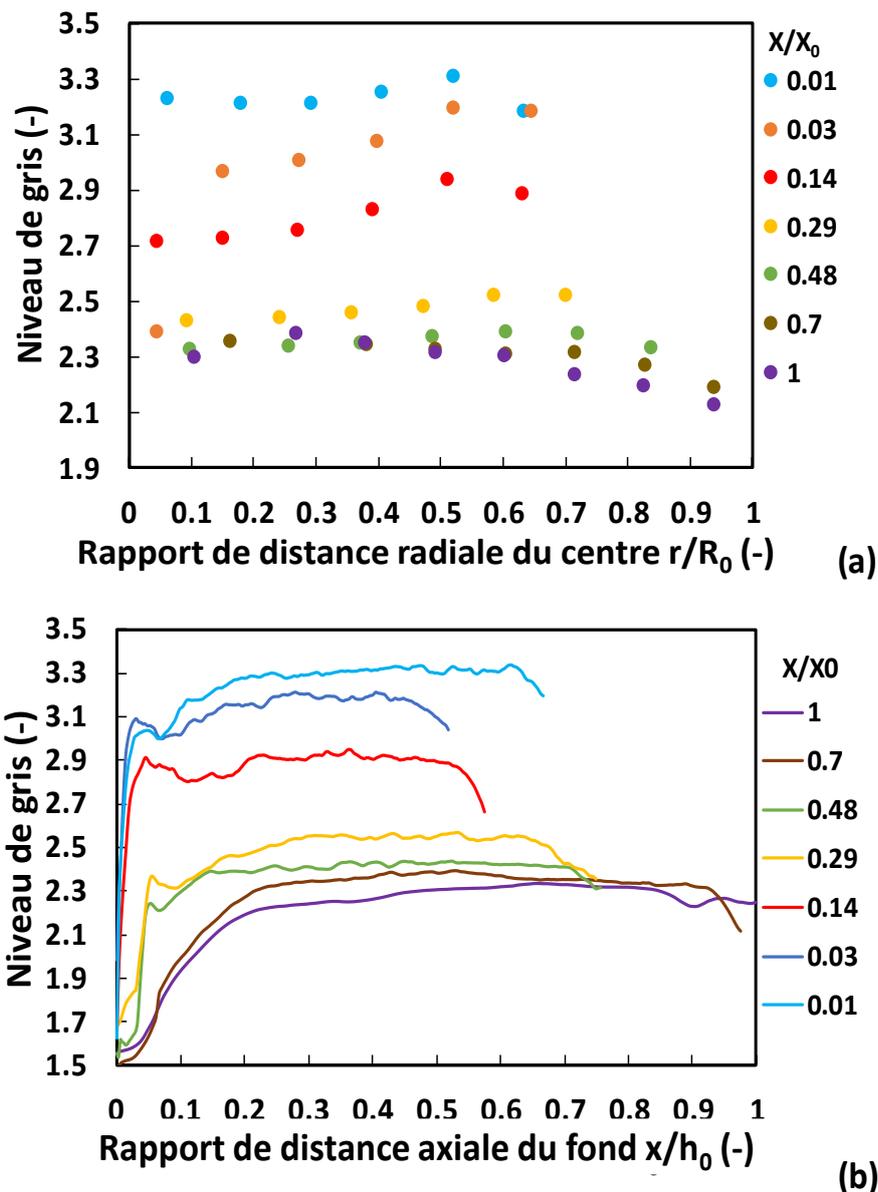


Figure IV-9 : Évolution (a) radiale et (b) axiale du niveau de gris d'échantillons de 30 g de boue A (séchés à 65 °C et  $HR = 46\%$ ) avec la teneur en eau spécifique.

Les deux graphiques montrent des plateaux presque constants en niveaux de gris, même s'il y a

une augmentation du niveau de gris avant d'atteindre le palier constant de la Figure IV-9b. Cette augmentation pourrait être due à des artefacts et à des effets de bord lors de la reconstruction de l'image. Ces plateaux indiquent le faible gradient de la teneur en eau dans chaque échantillon. Cela pourrait refléter le fait que la boue se comporte comme un milieu homogène lors du séchage, grâce à sa petite taille. Cela pourrait également indiquer que le séchage des boues de ces petits échantillons est isotherme, ce qui se traduit par un faible gradient de teneur en eau dans le même échantillon.

Comme il a été démontré que l'évolution radiale et axiale de l'échelle de gris est presque constante pour chaque échantillon, nous avons procédé sur la valeur globale du niveau de gris pour chaque échantillon. A partir de la valeur globale du niveau de gris de chaque échantillon, la teneur en eau globale correspondante a été déterminée, comme détaillé dans le chapitre précédent (chapitre III). La Figure IV-10 montre l'évolution de la teneur en eau mesurée expérimentalement et déduite en fonction du rapport de niveau de gris. La méthode de calcul utilisée montre sa capacité à déterminer la teneur en eau des échantillons de boue en connaissant leurs valeurs de niveau de gris. Les valeurs calculées sont en bon accord avec les valeurs expérimentales, avec un coefficient de détermination  $R^2 = 0,99$  et  $RMSE = 0,1$  (kg d'eau. kg<sup>-1</sup> solide).

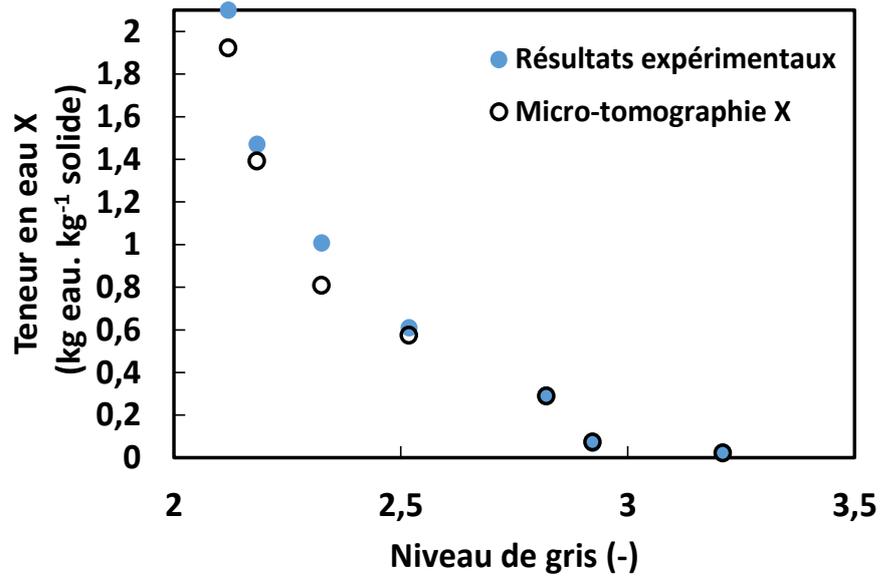


Figure IV-10 : Teneur en eau expérimentale et calculée en fonction du niveau de gris.

### 3. Masse volumique apparente

L'évolution de la masse volumique apparente de la boue est présentée dans la Figure IV-11. La masse volumique apparente dépend de deux facteurs, la masse et le volume de la boue. Les points noirs et rouges représentent respectivement l'évolution de la masse volumique apparente des boues A et B. La masse volumique apparente des boues A et B suit la même tendance. La masse volumique apparente initiale est de  $1200 \text{ kg. m}^{-3}$  pour la boue B ( $X_0 = 380 \%$ ) et de  $1330 \text{ kg. m}^{-3}$  pour la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ). Comme l'indiquent d'autres travaux [15, 16], dans la partie (a), correspondant à la teneur en eau la plus élevée, la perte d'eau est extrêmement importante, ce qui entraîne une énorme réduction de volume. Cependant, la masse volumique augmente légèrement avec la réduction de l'eau jusqu'à  $X = 120 \%$  en raison de la perte simultanée de volume et de masse élevée. La perte de masse et la perte de volume sont donc relativement comparables. Ensuite, la masse volumique augmente dans la partie (b) avec la réduction de la teneur en eau en raison de l'atténuation de la perte d'eau toujours accompagnée d'une réduction de volume relativement importante.

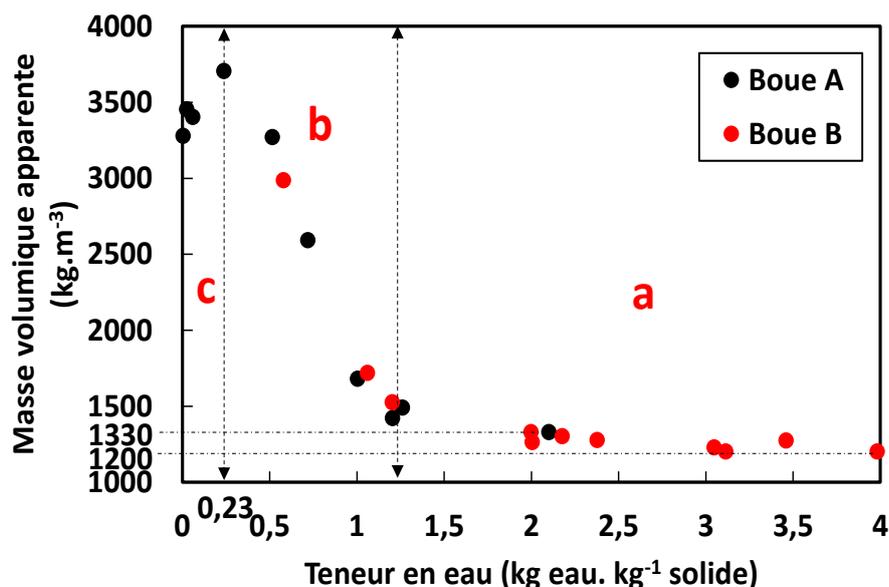


Figure IV-11 : Évolution de la masse volumique apparente de la boue avec la teneur en eau à 65 °C,  $HR = 46 \%$  et 200 mbar.

Par conséquent, la masse volumique apparente augmente jusqu'à 3700 kg. m<sup>-3</sup>, valeur obtenue pour la teneur en eau critique ( $X_{cr} = 23 \%$ ). Ensuite, la masse volumique diminue en partie (c) avec la réduction de la teneur en eau jusqu'à 3400 kg. m<sup>-3</sup> pour la boue sèche. Cette diminution est due à l'arrêt du phénomène du retrait des boues, toujours accompagné d'une perte d'eau minime en dessous de  $X_{cr}$ . L'évolution de la masse volumique apparente de la boue en fonction de sa teneur en eau est présentée sous forme de tableau (annexe B) et insérée dans les modèles numériques de séchage.

#### 4. Cinétiques du séchage expérimentales

Dans cette partie, les données de la cinétique de séchage de 30 g de boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) dans différentes conditions opératoires sont établies (température, humidité relative et pression sous vide). Les courbes de séchage des boues sont exprimées par la teneur en eau spécifique de la boue ( $X/X_0$ ) en fonction du temps de séchage. L'effet de chaque condition opératoire sur la cinétique de séchage est présenté ci-dessous. En outre, ces données cinétiques sont utilisées pour déterminer le terme de cinétique d'évaporation  $K_{vap}$  qui est supposé être égal aux vitesses de séchage de la boue et dépend des conditions opératoires. Par conséquent, les vitesses de

séchage des échantillons de boue de 30 g sont insérées dans le modèle numérique de séchage, sous forme de tableau en fonction de la teneur en eau spécifique et des conditions opératoires.

#### 4.1. Effet de la température

Les courbes de séchage acquises à 35, 45, 50, 55 et 65 °C pour la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) sont divisées en deux parties distinctes comme le montre la Figure IV-12. La teneur en eau spécifique diminue rapidement, puis lentement au fur et à mesure du séchage. Au départ, une réduction rapide de la teneur en eau spécifique se produit jusqu'à une valeur de  $X/X_0 = 0,7$  après 110, 67, 56, 50 et 42 h de séchage pour 35, 45, 50, 55 et 65 °C respectivement. Au-delà de cette valeur, la teneur en eau spécifique diminue légèrement jusqu'à atteindre l'équilibre ( $X_e/X_0 = 0,02$  correspondant à une teneur en eau  $X_e = 4\%$ ) après plus de 180, 110, 72, 65 et 50 h, respectivement à 35, 45, 50, 55 et 65 °C. La courbe la plus raide correspond à la valeur de température la plus élevée (65 °C). Le séchage est favorisé à des températures élevées avec un gain de temps de séchage réduit de plus du triple entre 65 et 35 °C, où le temps de séchage est le temps nécessaire pour atteindre la teneur en eau d'équilibre  $X_e$ .

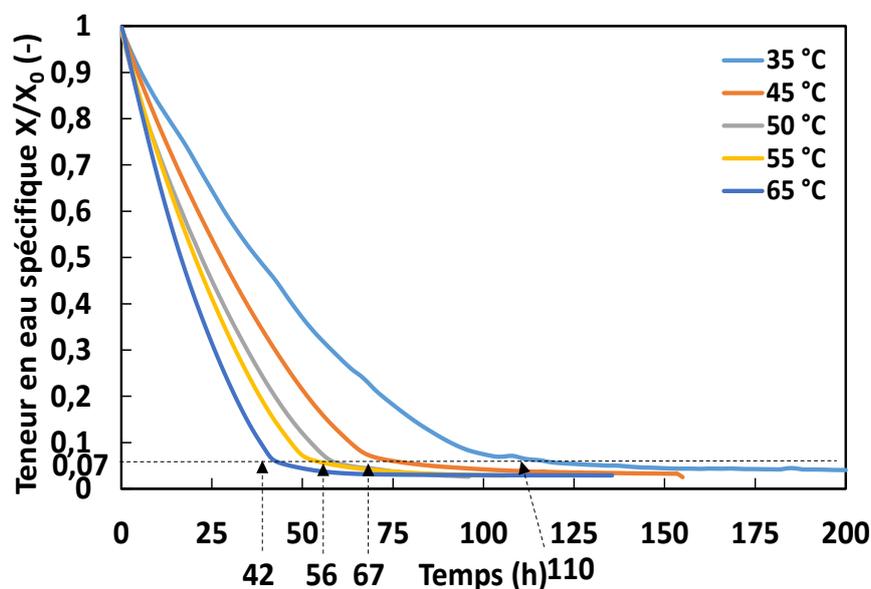


Figure IV-12 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction du temps, à différentes températures,  $HR = 46\%$  et à pression atmosphérique.

La Figure IV-13 le confirme en montrant que les vitesses de séchage spécifiques (pentes des courbes de séchage de la Figure IV-12) augmentent avec la température. Pour 35, 45, 50, 55 et 65 °C, les vitesses de séchage spécifiques atteignent un maximum de  $5,1 \times 10^{-6}$ ,  $6,4 \times 10^{-6}$ ,  $8,2 \times 10^{-6}$ ,  $8,5 \times 10^{-6}$  et  $9,9 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ , respectivement. Cela confirme que plus la température augmente, plus les vitesses de séchage sont élevées et plus le séchage est rapide, comme cela a été démontré précédemment [7]. En effet, le gradient de pression de vapeur entre la boue humide et l'environnement est considéré comme la force motrice qui provoque le mouvement de l'humidité vers l'extérieur. Comme la pression de vapeur exercée par la boue humide augmente très rapidement avec l'augmentation de la température, la vitesse de séchage augmente donc avec l'augmentation de la température.

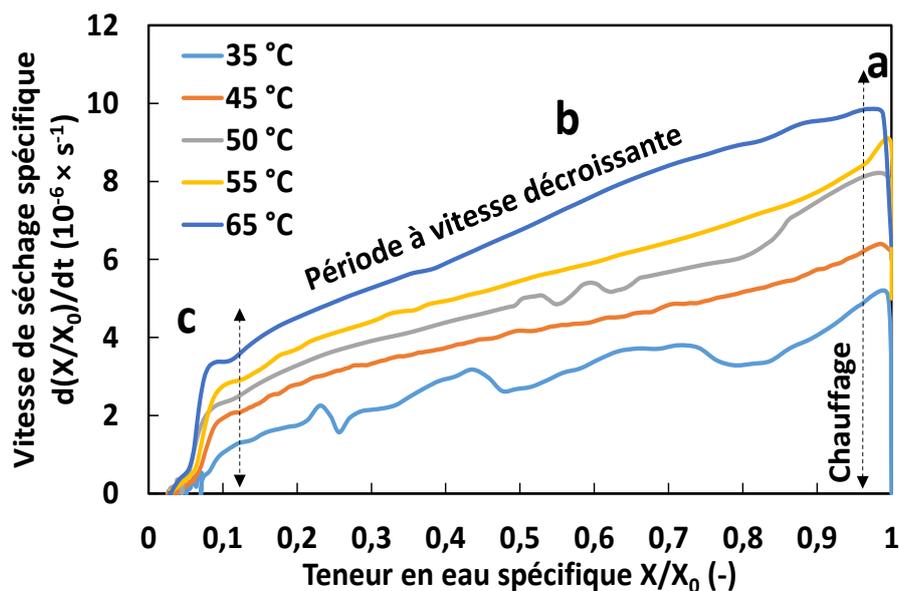


Figure IV-13 : Vitesse de séchage spécifique de la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) à différentes températures,  $HR = 46 \%$  et pression atmosphérique.

De plus, chaque courbe de vitesse de séchage est divisée en deux étapes, présentant une période de préchauffage et une période à vitesse décroissante. La première période (a) correspond au réchauffement de la boue ; elle a lieu au début du séchage pendant une courte période. Ensuite, la période à vitesse de séchage décroissante (b, c) commence lorsqu'il y a une diminution de la vitesse de séchage. Cette dernière correspond au temps où les résistances

internes de transfert de chaleur et de masse deviennent la phase limitante de la cinétique. La période de vitesse décroissante est divisée en deux périodes (b) et (c). La partie b commence lorsque toute l'eau libre de la surface extérieure est éliminée. Le front de séchage qui se trouvait sur cette surface pénètre à l'intérieur du matériau tout en éliminant l'eau libre restante [17]. Une fois qu'il n'y a plus que de l'eau liée, la deuxième période de décélération (c) commence à  $X/X_0 = 0,11$ , et l'effet de la température devient moins important lorsque la teneur en eau diminue à un niveau bas. Le séchage est terminé lorsque la boue atteint sa teneur en eau d'équilibre dans les conditions opératoires considérées.

#### 4.2. Effet de l'humidité relative

La Figure IV-14 montre les résultats de la cinétique de séchage de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) obtenus pour six conditions d'humidité relative (22, 40, 46, 64, 74 et 80 %) à 65 °C et à la pression atmosphérique. Comme prévu, ces résultats indiquent une diminution progressive de la teneur en eau avec une pente dépendante de l'humidité relative imposée. Les temps de séchage requis des échantillons de boue de 30 g pour atteindre l'équilibre sont respectivement de 40, 60, 72, 142, 161 et 185 h, à 22, 40, 46, 64, 74 et 80 % d'humidité relative. Selon les résultats obtenus, le séchage des boues est 4,6 fois plus rapide à une humidité relative de 22 % qu'à une humidité relative de 80 %. En outre, la teneur en eau spécifique finale est de 0,05 à  $HR = 80\%$ , ce qui est sensiblement plus élevée que celle de l'échantillon séché à  $HR = 22\%$  (avec une teneur en eau spécifique finale de 0,02). En effet, l'humidité relative plus élevée de l'atmosphère environnante impose une teneur en eau d'équilibre plus élevée vers laquelle la boue se dirige [18, 19].

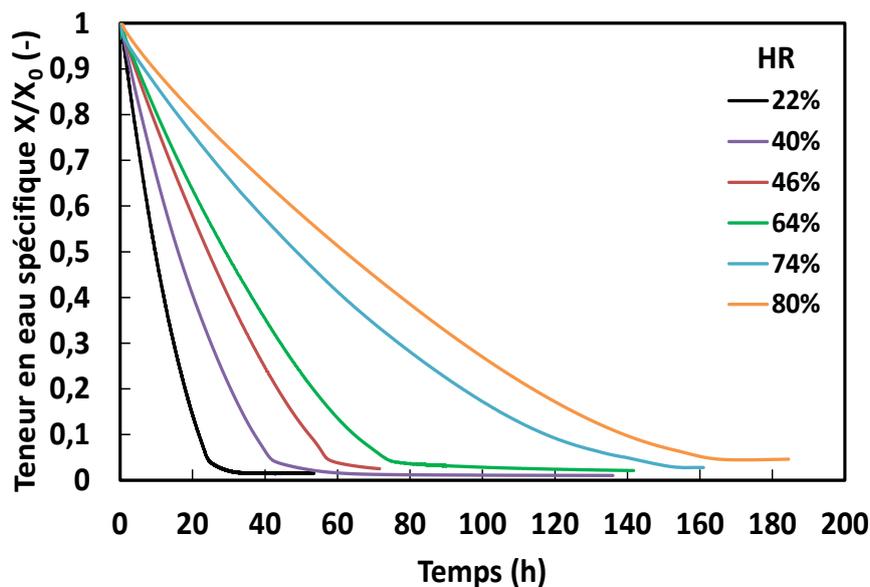


Figure IV-14 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) en fonction du temps, à  $65 \text{ }^\circ\text{C}$  et à pression atmosphérique, à différentes humidités relatives.

L'influence de l'humidité relative peut être confirmée en comparant les vitesses de séchage spécifiques à différentes humidités relatives. La Figure IV-15 montre que les vitesses de séchage spécifiques (pentes des courbes de séchage de la Figure IV-14) diminuent lorsque l'humidité relative augmente. Elles atteignent des amplitudes moyennes de  $12,6 \times 10^{-6}$ ,  $6,9 \times 10^{-6}$ ,  $5,0 \times 10^{-6}$ ,  $4,1 \times 10^{-6}$ ,  $2,4 \times 10^{-6}$  et  $1,8 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ , pour une humidité relative de 22, 40, 46, 64, 74 et 80 %, respectivement. Ce résultat est dû à l'atténuation de la force motrice du transfert de masse en raison de la présence d'une pression de vapeur d'eau plus élevée dans l'air ambiant lorsque l'humidité relative est plus élevée. Dans le cas présent, les vitesses de séchage sont presque doublées en diminuant l'humidité relative de l'air ambiant de 40 à 20 %, comme l'ont montré d'autres études sur le séchage de différents matériaux [20, 21].

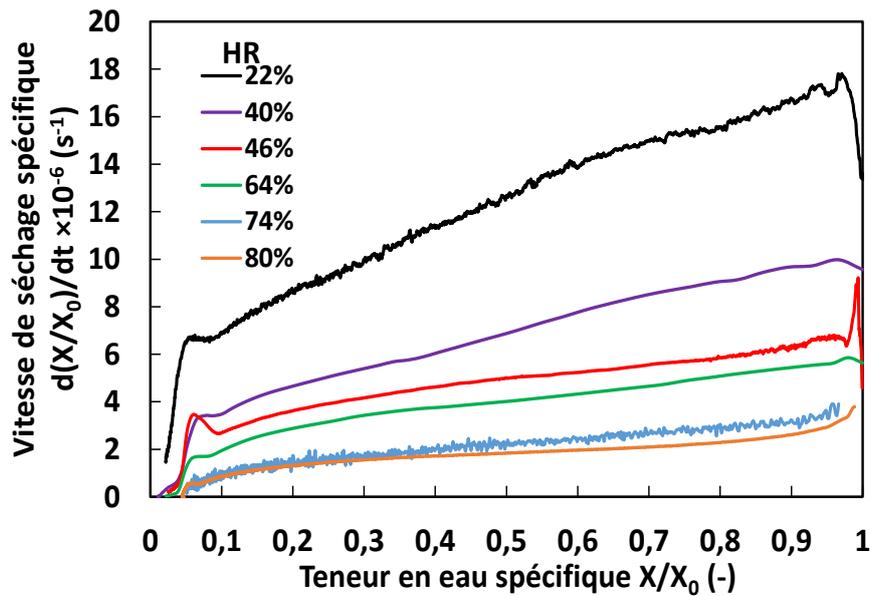


Figure IV-15 : Vitesse de séchage spécifique de la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) à différentes conditions d'humidité relative, 65 °C et à pression atmosphérique.

#### 4.3. Effet de la pression de vide

Une étude comparative de l'évolution de la teneur en eau de 30 g de boue A est réalisée en fonction de la pression (Figure IV-16), en maintenant une température de 65 °C et une humidité relative de 46 %. Trois valeurs de pression absolue différentes sont étudiées : 200, 350 et 1000 mbar (pression atmosphérique). Au début du séchage, une perte d'eau  $X/X_0$  de 24,5 % est enregistrée dans la première heure pendant le séchage sous 200 mbar, alors que la teneur en eau est très proche de la valeur initiale à 350 et 1000 mbar. La teneur en eau spécifique diminue rapidement, puis lentement au fur et à mesure du séchage. La teneur en eau diminue presque linéairement et semble progresser plus rapidement à 200 mbar qu'à 350 mbar ou à la pression atmosphérique. La courbe la plus raide correspond à la valeur de pression absolue la plus basse (200 mbar). L'état d'équilibre ( $X_e/X_0 = 0,02$  correspondant à une teneur en eau  $X_e = 4 \%$ ) est atteint à 32, 43 et 80 h respectivement sous 200, 350 et 1000 mbar. Le séchage est favorisé à basse pression absolue (séchage sous vide) avec un gain de 60 % du temps de séchage entre 200 mbar et 1000 mbar. À une pression absolue plus basse, le gradient de pression de vapeur entre la boue et l'air ambiant est plus élevé, ce qui favorise les mécanismes de séchage [22].

Des effets similaires ont été signalés par d'autres études pour différents matériaux [23–25].

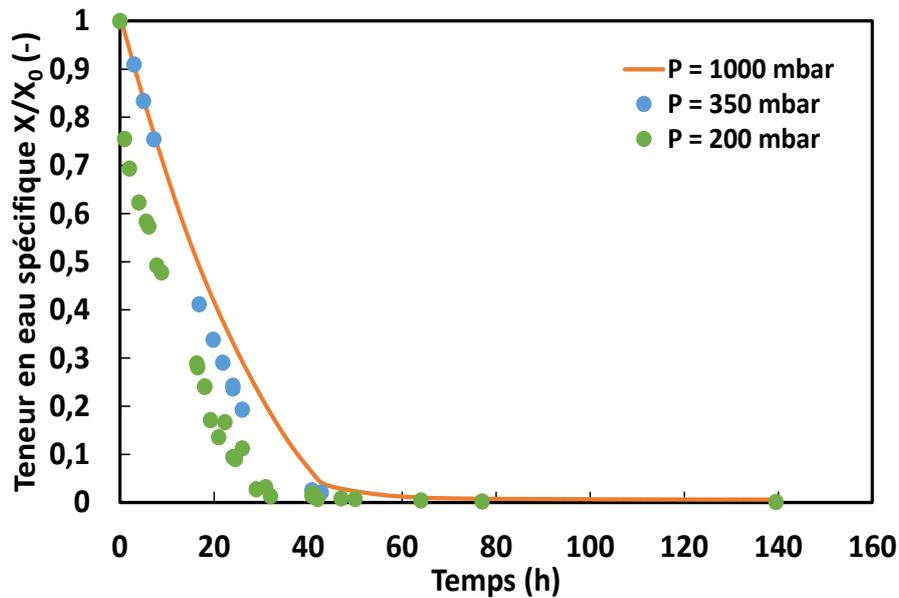


Figure IV-16 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction du temps, à des pressions absolues de 200, 350 et 1000 mbar, 65 °C et  $HR = 46\%$ .

## 5. Isothermes de désorption de l'eau

L'activité de l'eau est caractéristique des interactions microscopiques entre la phase aqueuse et la phase solide dans un milieu poreux humide [26]. Les isothermes de sorption de l'eau renseignent sur l'intensité des liaisons hydriques et sur la teneur en eau à l'équilibre. Elles fournissent une précision sur le transport d'eau et son élimination lors du séchage [27]. Sur la base de la cinétique expérimentale de séchage, l'équilibre thermodynamique de chaque échantillon de boue A est atteint après 1 à 3 semaines de séchage, en fonction de l'humidité relative de l'atmosphère. Au stade de l'équilibre, l'activité d'eau  $a_w$  de l'échantillon est égale à l'humidité relative du milieu environnant. La Figure IV-17 montre les isothermes expérimentales de désorption de l'eau et les quatre modèles ajustés. Comme le montre la Figure IV-17, la teneur en eau à l'équilibre diminue avec la diminution de l'activité d'eau. La courbe de l'isotherme de sorption a une forme sigmoïde de type II dans la classification IUPAC des isothermes d'adsorption [28]. La courbe tend vers une asymptote verticale ( $a_w = 1$ ) avec l'augmentation de la teneur en eau. En effet, lorsque la teneur en eau est élevée, les pores se

remplissent d'eau libre, ce qui impose une valeur d'activité d'eau proche de 1.

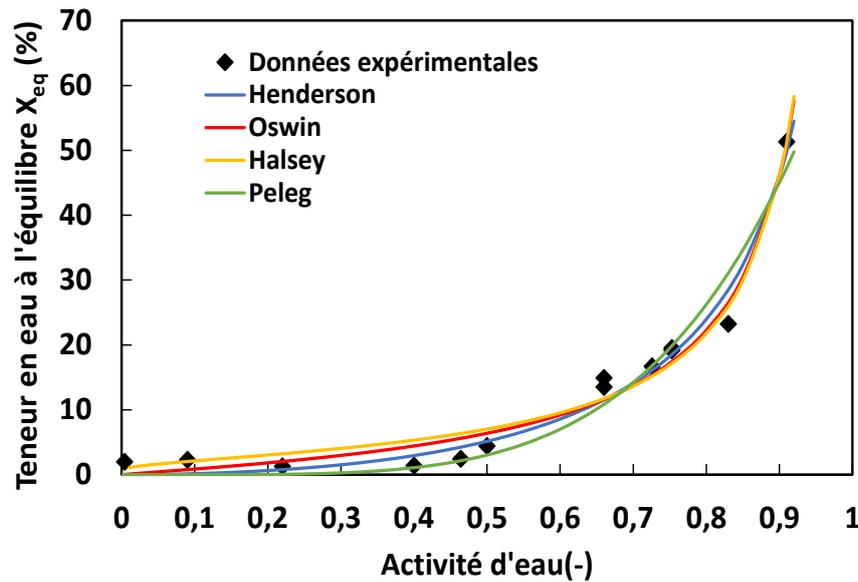


Figure IV-17 : Isotherme de désorption de la boue A à 65 °C : données expérimentales (losange noir) et données ajustées (lignes complètes).

Le Tableau IV-1 compile les valeurs des coefficients empiriques (A et B) et des paramètres statistiques (coefficient de détermination  $R^2$  et erreur quadratique moyenne  $RMSE$ ) qui qualifient l'ajustement des quatre modèles sur l'isotherme de désorption de la boue. Le modèle de Henderson s'avère être le plus approprié pour décrire l'isotherme de désorption de la boue A étudiée, avec le  $R^2 = 0,98$  le plus élevé et la  $RMSE = 2,31$  % (kg eau.  $kg^{-1}$  solide) la plus faible. Les trois autres modèles ne semblent pas très cohérents avec les données expérimentales. Les données expérimentales de la désorption de l'eau de la boue sont présentées dans l'annexe B. Le modèle de Henderson est mis en œuvre, avec ses coefficients estimés A et B, dans le modèle numérique de séchage. En ce qui concerne l'activité d'eau de la boue B entre 380 et 210 %, elle est supposée être égale à 1, étant donné la valeur élevée de la teneur en eau.

Tableau IV-1 : Estimation des coefficients A et B et des paramètres statistiques pour les quatre modèles des isothermes de désorption de la boue A à 65 °C.

Modèle	A	B	$R^2$ %	$RMSE$ % (kg eau. $kg^{-1}$ solide)
Oswin	6,396	0,900	97,2	2,47
Halsey	4,542	1,019	96,4	2,78
Henderson	0,282	1,823	97,5	2,31
Peleg	72,72	4,566	94,9	3,16

## 6. Coefficient de diffusion d'eau apparent

Les données cinétiques de la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) obtenues à 45, 55 et 65°C sont utilisées pour établir l'équation reliant la diffusivité d'eau apparente avec la teneur en eau et la température. Les données cinétiques à 50 °C sont utilisées pour valider l'approche de modélisation pour résoudre l'équation de Richards. L'évolution de la diffusivité d'eau apparente en fonction de la teneur en eau spécifique pour trois températures (45, 55 et 65 °C) est présentée à la Figure IV-18. La diffusivité d'eau apparente augmente avec la réduction de la teneur en eau. Selon plusieurs travaux [29–32], l'augmentation de la diffusivité d'eau avec la réduction de la teneur en eau est due à la dominance de la diffusion de vapeur sur la diffusion de liquide. Puisque la diffusivité apparente d'eau est la somme des diffusivités en phase vapeur et en phase liquide, et puisque le coefficient de diffusion de la vapeur augmente avec la réduction de la teneur en eau, le coefficient de diffusion d'eau apparent augmente donc avec la réduction de la teneur en eau. Ensuite, à partir de  $X_{cr}/X_0 = 0,11$ , l'augmentation abrupte du coefficient de diffusion de l'eau apparent coïncide avec l'atteinte du volume constant de la boue. À ce stade, les particules solides se rejoignent et délimitent un réseau poreux complexe. En conséquence, des contractions capillaires et une augmentation de la tension superficielle sont provoquées, ce qui entraîne une augmentation brutale du coefficient de diffusion apparent. De plus, la diffusivité d'eau apparente augmente nettement avec la température selon la loi d'Arrhenius, comme cela a été observé dans d'autres études [33–35]. En effet, la pression de vapeur exercée par la boue humide augmente avec l'augmentation de la température, ce qui améliore le transfert d'eau dans la boue et accroît la diffusivité d'eau apparente.

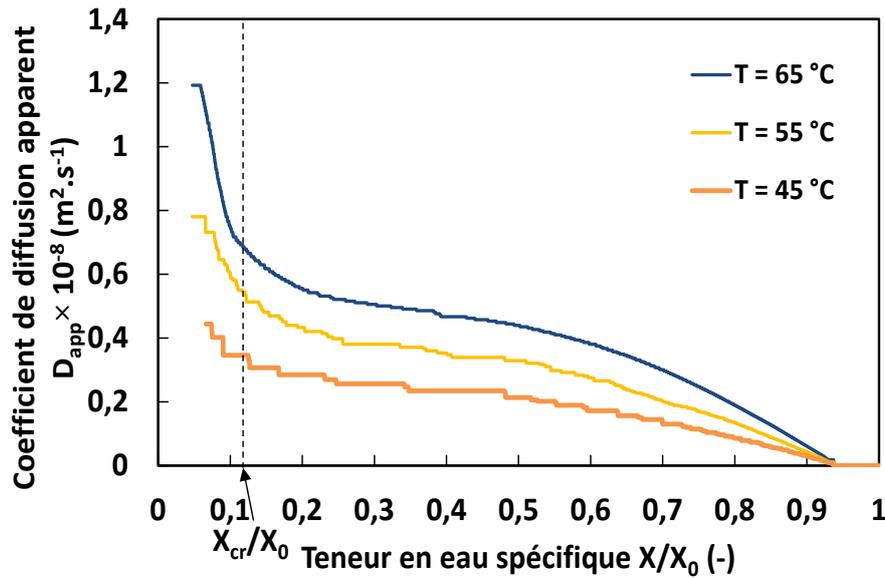


Figure IV-18 : Estimation numérique du coefficient de diffusion d'eau apparent de la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) en fonction de la teneur en eau spécifique, à 45, 55 et 65 °C.

Les valeurs de la diffusivité d'eau apparente sont ajustées avec l'Équation (IV-7) ( $X_0 = 210\%$ ) :

$$D_{app}(X, T) = 10^{-8} \left( (8888 - 8237 \frac{X}{X_0} + 31220) \exp\left(-31 \frac{X}{X_0}\right) \right) \times \exp\left(\frac{-26547}{R_{gas} T}\right) \quad (IV-7)$$

Cette équation décrit l'évolution de la diffusivité d'eau apparente en fonction de la teneur en eau et de la température des boues étudiées. Elle est en bon accord avec les données expérimentales ( $R^2 = 0,97$  et  $RMSE = 0,04 (10^{-8} \times m^2 \cdot s^{-1})$ ) telles que rapportées par des modèles similaires [36]. Afin de valider l'approche numérique, la diffusivité d'eau apparente à 50 °C est calculée en fonction de la teneur en eau à l'aide de l'Équation (IV-8). Les valeurs résultantes sont introduites dans l'équation de Richards pour simuler la cinétique de séchage à 50 °C.

Enfin, les simulations sont comparées aux données expérimentales dans les mêmes conditions opératoires. Les résultats de la Figure IV-19 montrent un bon accord entre les résultats des simulations et les données expérimentales ( $RMSE = 0,04\%$  (kg eau. kg<sup>-1</sup> solide)) et valident cette approche numérique. En ce qui concerne la boue B, entre 380 et 210 %, le coefficient de diffusion apparent est supposé indépendant de la teneur en eau et égal à celui de 210 %.

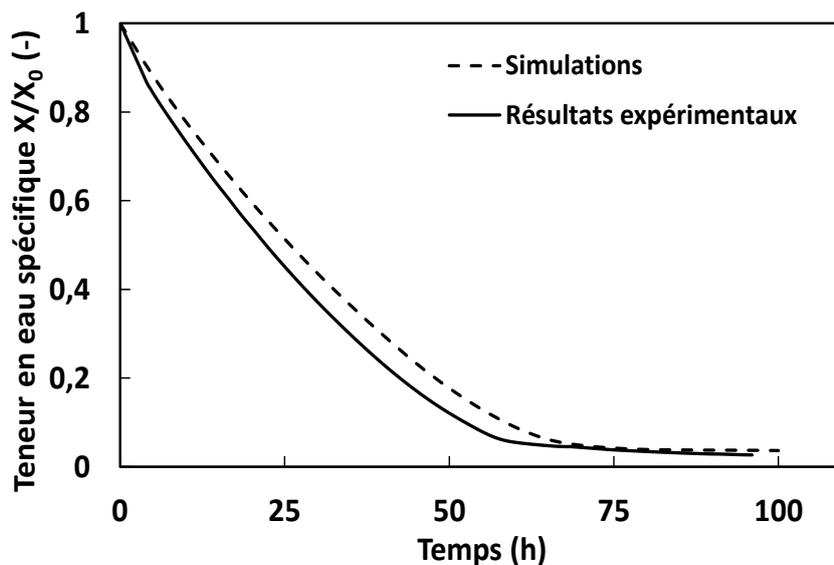


Figure IV-19 : Résultats expérimentaux et simulés de la cinétique de séchage de la boue A à 50 °C, 1000 mbar et  $HR = 46\%$ .

## 7. Conclusions

Dans ce chapitre, les évolutions des principales propriétés thermo-physiques ainsi que le retrait de la boue A et de la boue B sont étudiés pendant le séchage. Un article scientifique présentant les propriétés intrinsèques de la boue, a été soumis et est en révision pour acceptation finale dans le cadre du travail de cette thèse (Annexe C). La conductivité thermique effective diminue de façon linéaire avec la teneur en eau. La capacité calorifique diminue de façon exponentielle avec la réduction de l'eau en raison de la réduction de l'eau et de la formation de sel. La boue se contracte linéairement jusqu'à atteindre une teneur en eau critique  $X_{cr} = 23\%$  et se maintient ensuite à volume constant jusqu'à la fin du séchage. Le coefficient de retrait  $\beta$  dépend de la teneur en eau initiale de la boue. La méthode d'analyse du niveau de gris permet d'accéder à la teneur en eau des échantillons de boues. Le modèle de Henderson semble être le plus approprié pour décrire l'isotherme de sorption de l'eau des boues. Un modèle numérique consacré à la résolution de l'équation de Richard a été validé sur des données expérimentales. Il en résulte que la diffusivité d'eau apparente, déterminée numériquement à partir de la cinétique expérimentale de séchage, augmente avec la réduction de l'eau et la température. Les relations

reliant  $K_{eff}$ ,  $c_p$ ,  $a_w$ , la masse volumique apparente de la boue, le coefficient de retrait  $\beta$  avec la teneur en eau ; ainsi que les relations de  $K_{vap}$  et  $D_{app}$  avec la température et la teneur en eau des boues A et B, seront utilisées comme données d'entrée pour les modèles numériques de séchage (cf. chapitre VI). Le chapitre suivant détaillera la maquette développée au laboratoire qui est homothétique au fût industriel et qui a servi à étudier le comportement de la boue B pendant le séchage, et à valider le modèle numérique de séchage à l'échelle intermédiaire (échelle de la maquette expérimentale).

## Références

- [1] Kohout, M.; Collier, A. P.; Štěpánek, F. Effective Thermal Conductivity of Wet Particle Assemblies. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2004**, *47* (25), 5565–5574. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.07.031>.
- [2] Fasina, O. O.; Sokhansanj, S. Bulk Thermal Properties of Alfalfa Pellets. *Canadian Agricultural Engineering*, **1995**, *37* (2), 5.
- [3] Cosenza, P.; Guerin, R.; Tabbagh, A. Relationship between Thermal Conductivity and Water Content of Soils Using Numerical Modelling. *European Journal of Soil Science*, **2003**, *54* (3), 581–588. <https://doi.org/10.1046/j.1365-2389.2003.00539.x>.
- [4] Quang, D. V.; Dindi, A.; Rayer, A. V.; Hadri, N. E.; Abdulkadir, A.; Abu-Zahra, M. R. M. Effect of Moisture on the Heat Capacity and the Regeneration Heat Required for CO<sub>2</sub> Capture Process Using PEI Impregnated Mesoporous Precipitated Silica. *Greenhouse Gas Science Technology*, **2015**, *5* (1), 91–101. <https://doi.org/10.1002/ghg.1427>.
- [5] Laliberté, M. A Model for Calculating the Heat Capacity of Aqueous Solutions, with Updated Density and Viscosity Data. *Journal of Chemical & Engineering Data*, **2009**, *54* (6), 1725–1760. <https://doi.org/10.1021/je8008123>.
- [6] Lynn, B.; Medved, A.; Griggs, T. A Comparative Analysis on the Impact of Salinity on the Heat Generation of OTEC Plants to Determine the Most Plausible Geographical Location. *PAMR*, **2018**, *5*, 119–130. <https://doi.org/10.5130/pamr.v5i0.1500>.
- [7] Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Léonard, A. Modeling and Simulation of Heat and Mass Transfer during Convective Drying of Wastewater Sludge with Introduction of Shrinkage Phenomena. *Drying Technology*, **2014**, *32* (1), 13–22. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.807281>.
- [8] Krokida, M. K.; Maroulis, Z. B. Effect Of Drying Method On Shrinkage And Porosity. *Drying Technology*, **1997**, *15* (10), 2441–2458. <https://doi.org/10.1080/07373939708917369>.
- [9] Krokida, M. K.; Zogzas, N. P.; Maroulis, Z. B. Modelling Shrinkage and Porosity during Vacuum Dehydration. *International Journal of Food Science & Technology*, **1997**, *32* (6), 445–458. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.1997.tb02119.x>.
- [10] Ketelaars, A. A. J. Drying Deformable Media Kinetics, Shrinkage and Stresses. *Drying Technology*, **1994**, *12* (4), 983–987. <https://doi.org/10.1080/07373939408960008>.
- [11] Leonard, A.; Blacher, S.; Marchot, P.; Pirard, J. P.; Crine, M. Image Analysis of X-Ray Microtomograms of Soft Materials during Convective Drying. *Journal of Microscopy*, **2003**, *212* (2), 197–204. <https://doi.org/10.1046/j.1365-2818.2003.01242.x>.
- [12] Tao, T.; Peng, X. F.; Lee, D. J. Skin Layer on Thermally Dried Sludge Cake. *Drying Technology*, **2006**, *24* (8), 1047–1052. <https://doi.org/10.1080/07373930600776258>.
- [13] Tao, T.; Peng, X. F.; Lee, D. J. Thermal Drying of Wastewater Sludge: Change in Drying Area Owing to Volume Shrinkage and Crack Development. *Drying Technology*, **2005**, *23* (3), 669–682. <https://doi.org/10.1081/DRT-200054164>.
- [14] Li, J.; Plougonven, E.; Fraikin, L.; Salmon, T.; Toye, D.; Léonard, A. Image Analysis of X-Ray Tomograms of Sludge during Convective Drying in a Pilot-Scale Fixed Bed. *Chemical Engineering Science*, **2015**, *134*, 222–229. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.05.010>.
- [15] Talla, A.; Puiggali, J.-R.; Jomaa, W.; Jannot, Y. Shrinkage and Density Evolution during Drying of Tropical Fruits: Application to Banana. *Journal of Food Engineering*, **2004**, *64* (1), 103–109. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2003.09.017>.
- [16] Chemkhi, S. Séchage d'un milieu déformable non saturé: Modélisation du couplage hygromécanique. *Université Bordeaux I*, **2008**, 135.
- [17] Shokri, N.; Lehmann, P.; Vontobel, P.; Or, D. Drying Front and Water Content Dynamics during Evaporation from Sand Delineated by Neutron Radiography: Drying Front and Water Content Dynamics. *Water Resources Research*, **2008**, *44* (6). <https://doi.org/10.1029/2007WR006385>.
- [18] Freire, F. B.; Pires, E. C.; Freire, J. T. Moisture Adsorption and Desorption Behavior of Sludge Powder. *Environmental Technology*, **2007**, *28* (11), 1195–1203. <https://doi.org/10.1080/09593332808618880>.

- [19] Bellur, S. R.; Coronella, C. J.; Vásquez, V. R. Analysis of Biosolids Equilibrium Moisture and Drying. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, **2009**, *28* (2), 291–298. <https://doi.org/10.1002/ep.10353>.
- [20] Ju, H.-Y.; Zhao, S.-H.; Mujumdar, A. S.; Zhao, H.-Y.; Duan, X.; Zheng, Z.-A.; Gao, Z.-J.; Xiao, H.-W. Step-down Relative Humidity Convective Air Drying Strategy to Enhance Drying Kinetics, Efficiency, and Quality of American Ginseng Root ( *Panax Quinquefolium* ). *Drying Technology*, **2019**, 1–14. <https://doi.org/10.1080/07373937.2019.1597373>.
- [21] Balbay, A. Effects of Environmental Temperature and Relative Humidity on the Rehydration of Dried Pistachios. *Drying Technology*, **2019**, *37* (10), 1239–1250. <https://doi.org/10.1080/07373937.2018.1493692>.
- [22] Mitra, J.; Shrivastava, S. L.; Srinivasa Rao, P. Vacuum Dehydration Kinetics of Onion Slices. *Food and Bioproducts Processing*, **2011**, *89* (1), 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2010.03.009>.
- [23] Methakhup, S.; Chiewchan, N.; Devahastin, S. Effects of Drying Methods and Conditions on Drying Kinetics and Quality of Indian Gooseberry Flake. *LWT - Food Science and Technology*, **2005**, *38* (6), 579–587. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2004.08.012>.
- [24] Péré, C.; Rodier, E. Microwave Vacuum Drying of Porous Media: Experimental Study and Qualitative Considerations of Internal Transfers. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, **2002**, *41* (5), 427–436. [https://doi.org/10.1016/S0255-2701\(01\)00161-1](https://doi.org/10.1016/S0255-2701(01)00161-1).
- [25] Arévalo-Pinedo, A.; Xidieh Murr, F. E. Influence of Pre-Treatments on the Drying Kinetics during Vacuum Drying of Carrot and Pumpkin. *Journal of Food Engineering*, **2007**, *80* (1), 152–156. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2006.05.005>.
- [26] Dissa, A. O.; Compaore, A.; Tiendrebeogo, E.; Koulidiati, J. An Effective Moisture Diffusivity Model Deduced from Experiment and Numerical Solution of Mass Transfer Equations for a Shrinkable Drying Slab of Microalgae. *Drying Technology*, **2014**, *32* (10), 1231–1244. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.897234>.
- [27] Vaxelaire, J. Moisture Sorption Characteristics of Waste Activated Sludge. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, **2001**, *76* (4), 377–382. <https://doi.org/10.1002/jctb.392>.
- [28] R. Andrade; R. Lemus; C. Pérez. Models of Sorption Isotherms for Food: Uses and Limitations. *Vitae*, **2011**, *18* (3).
- [29] Pickles, C. A. Drying Kinetics of Nickeliferous Limonitic Laterite Ores. *Minerals Engineering*, **2003**, *16* (12), 1327–1338. [https://doi.org/10.1016/S0892-6875\(03\)00206-1](https://doi.org/10.1016/S0892-6875(03)00206-1).
- [30] Çağlar, A.; Toğrul, İ. T.; Toğrul, H. Moisture and Thermal Diffusivity of Seedless Grape under Infrared Drying. *Food and Bioproducts Processing*, **2009**, *87* (4), 292–300. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2009.01.003>.
- [31] Darvishi, H.; Asl, A. R.; Asghari, A.; Azadbakht, M.; Najafi, G.; Khodaei, J. Study of the Drying Kinetics of Pepper. *Journal of the Saudi Society of Agricultural Sciences*, **2014**, *13* (2), 130–138. <https://doi.org/10.1016/j.jssas.2013.03.002>.
- [32] Dak, M.; Pareek, N. K. Effective Moisture Diffusivity of Pomegranate Arils under Going Microwave-Vacuum Drying. *Journal of Food Engineering*, **2014**, *122*, 117–121. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2013.08.040>.
- [33] Reyes, A.; Eckholt, M.; Troncoso, F.; Efremov, G. Drying Kinetics of Sludge from a Wastewater Treatment Plant. *Drying Technology*, **2005**, *22* (9), 18.
- [34] Pakowski, Z.; Głębowski, M.; Adamski, R. Modeling of Drying of Highly Shrinking Materials Using Hydrogels as an Example. *Drying Technology*, **2006**, *24* (9), 1075–1081. <https://doi.org/10.1080/07373930600778130>.
- [35] Gómez-de la Cruz, F. J.; Palomar-Carnicero, J. M.; Casanova-Peláez, P. J.; Cruz-Peragón, F. Experimental Determination of Effective Moisture Diffusivity during the Drying of Clean Olive Stone: Dependence of Temperature, Moisture Content and Sample Thickness. *Fuel Processing Technology*, **2015**, *137*, 320–326. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2015.03.018>.
- [36] Louarn, S.; Ploteau, J.; Glouannec, P.; Noel, H. Experimental and Numerical Study of Flat Plate Sludge Drying at Low Temperature by Convection and Direct Conduction. *Drying Technology*, **2014**, *32* (14), 1664–1674. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.916299>.



## V. Maquette expérimentale à l'échelle du laboratoire

Afin de prévoir le comportement des boues lors de leur séchage dans le fût industriel, des essais de séchage sont effectués à une échelle intermédiaire en laboratoire. À cette fin, un dispositif expérimental instrumenté à l'échelle du laboratoire est conçu pour étudier le séchage des boues *in situ* dans le fût, tout en surveillant les paramètres de séchage. Il s'agit d'une maquette cylindrique et homothétique au fût industriel. La réduction d'échelle permet d'éviter de produire une grande quantité de déchets et de réduire le temps de séchage des boues. Ce qui garantit d'obtenir des résultats en durée compatible avec la durée de la thèse, tout en satisfaisant la sécurité au laboratoire. Il est prévu que le fût industriel soit placé dans une chambre chauffée à 65 °C et soumis à une pression absolue de 200 mbar. Pour être aussi proche que possible de ces conditions de séchage industriel, la cuve de la maquette est placée dans une étuve à pression et température contrôlées. De plus, elle est équipée d'un ensemble de capteurs pour enregistrer en continu les mesures de température, d'humidité relative, de pression et de perte de masse pendant le séchage des boues. Ces mesures vont permettre de valider le modèle numérique développé pour simuler les mécanismes de séchage des boues, en comparant les simulations (à l'échelle de la maquette) avec les résultats expérimentaux. La première partie de ce chapitre est une description technique détaillée de la maquette expérimentale instrumentée. La deuxième partie du chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus lors du séchage de la boue B dans la maquette expérimentale. Les résultats des essais de séchage qui ont permis de déterminer le terme de cinétique d'évaporation et l'humidité relative du modèle de séchage à l'échelle de la maquette du laboratoire sont également présentés.

### 1. Maquette expérimentale

La Figure V-1 montre la maquette expérimentale à l'échelle du laboratoire. Elle comprend une cuve instrumentée introduite dans une étuve à pression et température contrôlées. Cette étuve est reliée à une pompe à vide afin d'assurer le vide partiel nécessaire pendant le séchage. Un

système de condensation est placé entre l'étuve et la pompe afin de condenser la vapeur d'eau sortant de l'étuve, produite par évaporation pendant le séchage des boues. La cuve est placée sur une balance industrielle pour permettre une mesure continue de la perte d'eau globale. La cuve est équipée d'un ensemble de capteurs de température, d'humidité relative et de pression. Ces capteurs, ainsi que la balance industrielle, sont connectés à une station externe d'acquisition et de traitement des données placée à droite de l'étuve. Cette station est pilotée par un programme spécifique développé, avec le logiciel de contrôle-commande LabVIEW (Version 2015), pour les besoins spécifiques de l'appareil de laboratoire.

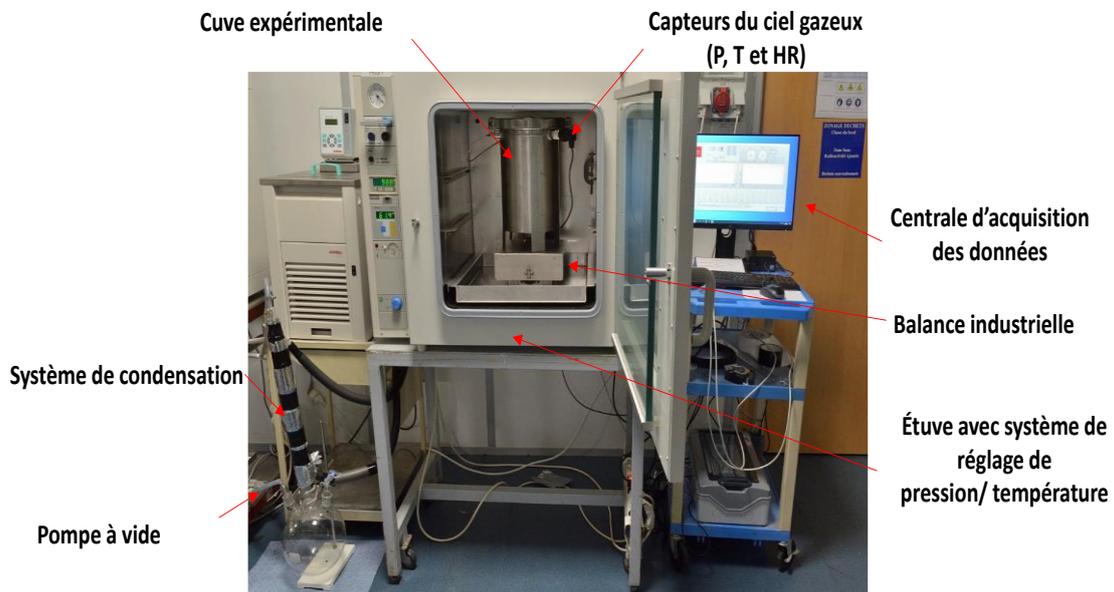


Figure V-1 : Maquette expérimentale instrumentée à l'échelle du laboratoire dédiée au séchage de la boue B.

La cuve a une géométrie cylindrique et représente 1:23 du volume du fût industriel. Comme le montre la Figure V-2, il s'agit d'un cylindre métallique d'un rayon interne de 10 cm et d'une hauteur utile de 28,5 cm. La paroi métallique est en acier inoxydable 316 L de 0,3 cm d'épaisseur. La cuve pèse 8,13 kg et a un volume de remplissage total de 9 L. En haut, un couvercle percé au centre et doté d'un trou de 2 cm de diamètre recouvre le cylindre. Il permet d'évacuer la vapeur d'eau produite au cours du séchage afin de maintenir constant le vide partiel à l'intérieur de la cuve. Comme il est prévu que l'apport initial de boues ne dépasse pas 85 %

du volume total de remplissage de la cuve (soit une hauteur maximale de 24 cm), la partie supérieure de la cuve sera remplie d'un mélange de gaz (vapeur d'eau/air). Au niveau de la partie supérieure, les parois de la cuve ont deux trous qui sont placés à 26 cm de hauteur pour l'introduction de deux capteurs. Ces capteurs permettent de mesurer la pression, l'humidité relative et la température du mélange gazeux sus-jacent. La partie inférieure de la cuve, remplie de boue, contient une série de thermocouples dédiés à la surveillance de l'évolution de la température à l'intérieur de la boue. Le cylindre est placé sur des pieds métalliques de 5 cm de longueur pour permettre le passage des connecteurs des thermocouples, reliés au fond de la cuve par une ouverture étanche de 2,5 cm de diamètre. Au fur et à mesure de la progression du séchage, suite au retrait du volume de la boue, le volume du mélange gazeux (partie supérieure) au-dessus de la boue progressera par rapport à la partie inférieure (remplie de boue).



Figure V-2 : Cuve instrumentée dédiée au séchage de la boue B.

### 1.1. Instrumentation de la maquette

L'étuve de séchage sous vide (Heraeus/thermofisher VT 6130 M) utilisée pour les essais de séchage est équipée d'un système de contrôle de la température et de la pression, qui optimise le chauffage et la dépressurisation afin de contrôler une température et un vide homogènes à l'intérieur de l'étuve. Un raccord de passe-paroi étanche, conçu au préalable, est accroché par

une bride à vide (DN 25) à l'arrière de l'étuve. Ce passage-paroi permet de faire passer les câbles des capteurs et de la balance à l'extérieur de l'étuve sans perturber le vide partiel imposé à l'intérieur.

La pompe utilisée est une pompe à double membrane, fabriquée par KNF Neuberger, qui, selon ses spécifications, assure une pression absolue de 200 mbar. La pompe est reliée à l'étuve par une bride à vide (DN 25).

Afin de recueillir l'eau évaporée pendant le séchage des boues et d'éviter d'endommager la pompe en raison du flux d'eau qui pourrait passer à travers les membranes de la pompe, l'eau évaporée des boues doit être condensée. Pour cela, un système de condensation est placé entre la sortie de l'étuve et la pompe. Ce système est constitué d'un réfrigérant et d'un cryostat à circulation. Le réfrigérant est à double serpentin à contre-courant, il reçoit à l'entrée une eau froide disponible à 2 °C à un débit volumétrique de 26 L. min<sup>-1</sup>. A la sortie, l'eau froide utilisée est réintroduite dans le cryostat à circulation (F-33 JULABO) afin de la refroidir jusqu'à 2 °C (Figure V-3). Le condensat est alors recueilli dans un ballon de verre de 5 L placé sous le réfrigérant.

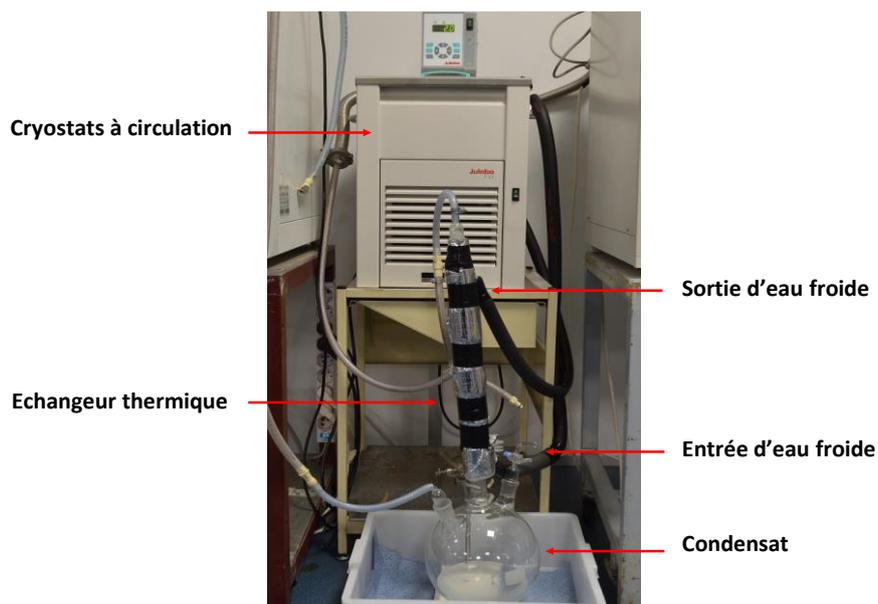


Figure V-3 : Système de condensation de la vapeur d'eau produite lors du séchage de la boue.

La balance industrielle utilisée dans ce travail est une cellule de charge METTLER TOLEDO, qui peut fonctionner au vide et peut supporter une température maximale de 62 °C (Figure V-4a). Un câble relie la balance industrielle à un transmetteur de pesage - ACT350 (Figure V-4b), qui est relié à l'ordinateur par une connexion Ethernet/IP. Ce câble assure à la fois l'alimentation électrique de la balance (24 V) et le transfert des données vers le transmetteur. Les pesées sont lues et enregistrées directement par le logiciel de contrôle. La précision de l'affichage des pesées ainsi que la répétabilité à charge maximale sont de 0,1 g. L'étalonnage de la balance a été effectué précédemment par METTLER TOLEDO (étalonnage Cofrac).

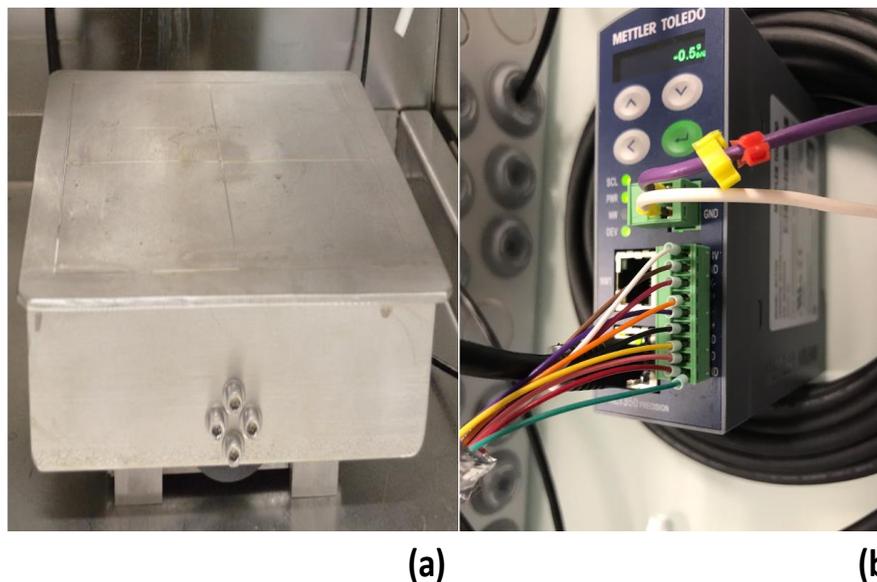


Figure V-4 : (a) Balance industrielle et (b) ACT350 - transmetteur de pesée utilisé pour le pesage en continu de la boue.

## 1.2. Instrumentation et mesures

❖ Capteur de pression (MESUREX) : Le capteur de pression introduit dans la partie supérieure de la cuve mesure la pression absolue du mélange vapeur d'eau/air à l'intérieur en contact avec la boue. Ce capteur a une plage de mesure de 0 à 1000 mbar de pression absolue. L'alimentation du capteur est de 24 V et le signal de sortie est de 4-20 mA selon la valeur de la pression absolue.

❖ Capteur d'humidité relative et de température (ROTRONIC) : Le capteur ROTRONIC mesure l'évolution de l'humidité relative et de la température dans le mélange de vapeur d'eau/air à l'intérieur de la cuve. Le capteur ROTRONIC a une plage de mesure de 0 à 100 % pour l'humidité relative et de - 40 à + 85 °C pour la température. Ce capteur est alimenté en 24 V et donne deux signaux de sortie entre 0 et 1 V chacun, en fonction de la valeur de l'humidité relative et de la température. Les 3 signaux de sortie des capteurs de pression (un signal de 4 – 20 mA) et d'humidité relative/température (deux signaux de 0 – 1 V) sont connectés à une carte d'acquisition de données au niveau de la station d'acquisition/traitement des données située à côté de l'étuve.

❖ Thermocouples dans la boue : 14 capteurs miniatures de température, des thermocouples de type T (TC), sont répartis tout le long d'un support fixé à l'intérieur de la cuve. Le support arborescent comprend : un axe vertical de 24 cm et trois branches perpendiculaires de 8 cm de long situées à 5, 10 et 17 cm de hauteur de la base (Figure V-5) avec un angle de 60° entre elles. Cet arbre à thermocouple est conçu pour suivre l'évolution des températures dans 1/3 du volume de la boue, en gardant le complément non perturbé. Les thermocouples sont répartis sur chaque branche à des rayons de 0, 3, 5 et 7 cm afin d'accéder à différentes hauteurs et différents rayons. Deux autres thermocouples sont placés sur l'axe vertical à 14 et 24 cm. L'arbre est fixé au fond de la cuve, avec un passage étanche qui permet d'externaliser les câbles des thermocouples vers l'extérieur.

Les câbles de thermocouples sont connectés à l'extérieur de la cuve, par des fiches miniatures à leurs extensions de prise respectives (Figure V-6a). Les 14 extensions (Figure V-6b) sont connectées, via le connecteur passe-paroi étanche de l'étuve, à deux cartes d'acquisition de données. Les thermocouples ont été calibrés selon la norme Cofrac pour deux points 20 et 60 °C. Une couche de vernis a été appliquée sur les capteurs afin de les protéger contre les attaques chimiques.

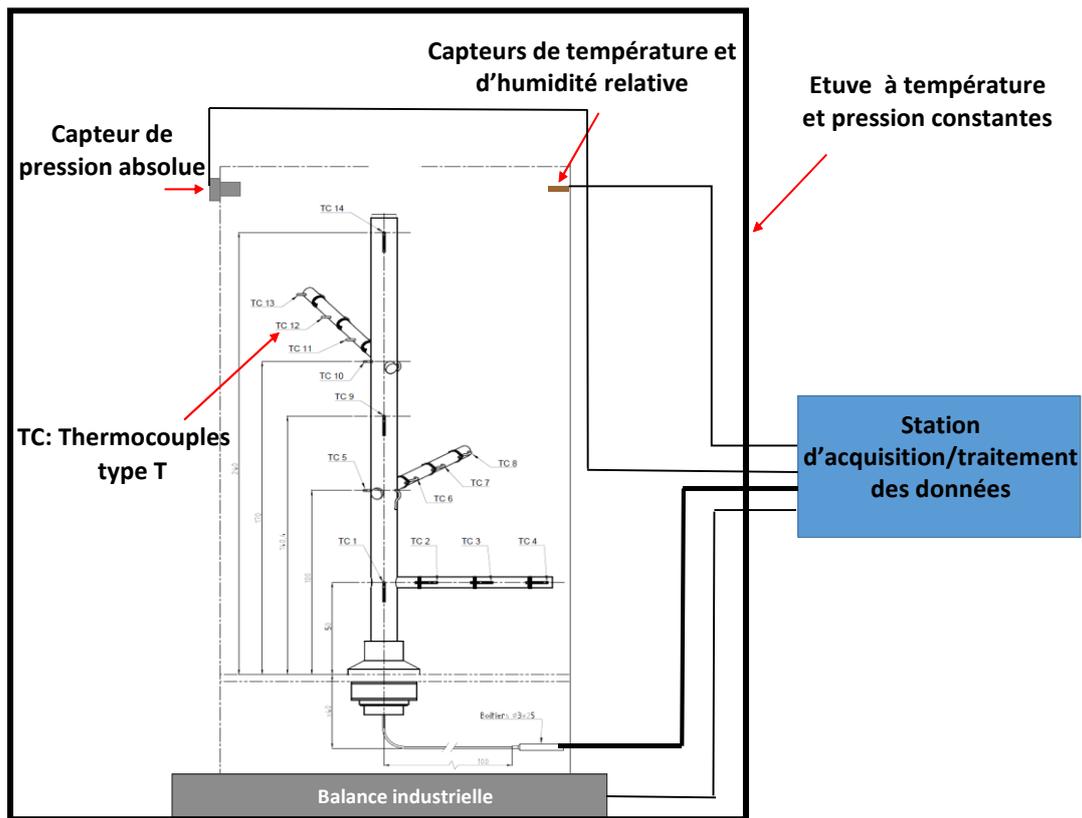


Figure V-5 : Coupe transversale interne en 2D de la cuve instrumentée à l'échelle du laboratoire.

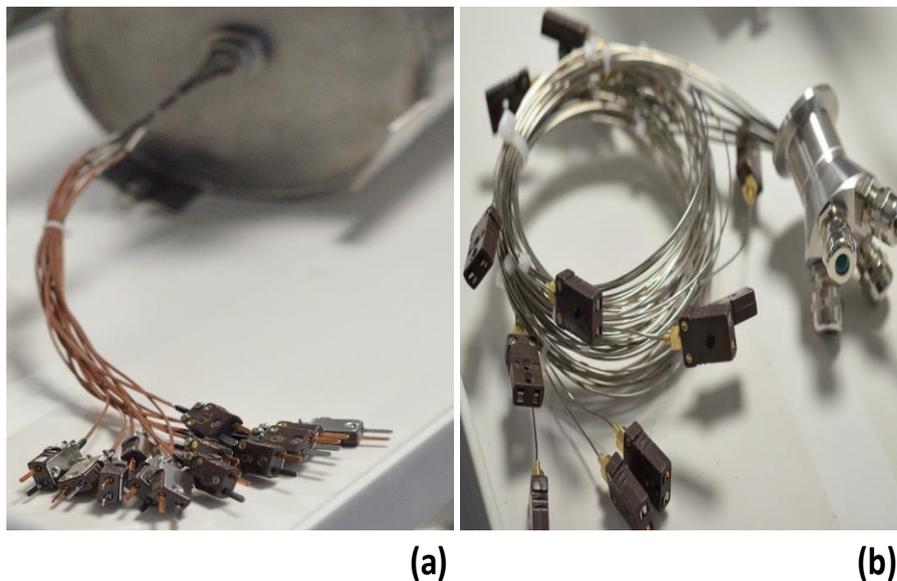


Figure V-6 : (a) Sortie des thermocouples du fond de la cuve et (b) extensions des thermocouples collées au passage étanche.

La station d'acquisition/traitement des données est constituée d'une partie *Hardware* qui contient tous les fournisseurs d'énergie (24 V), les cartes d'acquisition, le transmetteur du

pesage et l'ordinateur. Elle permet d'alimenter tous les capteurs, ainsi que la balance industrielle, et assure l'acquisition de leurs signaux. Le transmetteur de pesée relie les données directement au programme LabView via EtherNet/IP. Les signaux des capteurs sont lus en V ou mA puis formatés par le programme Labview, sur la base de calibrations linéaires comme mentionné dans les fiches techniques des capteurs (Tableau V-1). Les données sont automatiquement enregistrées dans des fichiers ".dat" et sont exportables pour être lues par un tableur Excel.

Tableau V-1 : Équations de calibrage des signaux de sortie des capteurs.

Paramètre mesuré	Gamme de mesure	Gamme de signal de sortie	Equation de calibrage
Pression absolue (mbar)	[0-1000]	[4-20] mA	$P_{abs} = 62,5 \times S - 250$
Température (°C)	[20-60]	[0-1] V	$T = 40 \times S + 20$
Humidité relative (%)	[0-100]	[0-1] V	$HR = 100 \times S$

Où  $P_{abs}$ ,  $T$ ,  $HR$  et  $S$  sont respectivement les valeurs mesurées de la pression absolue (mbar), la température (°C), l'humidité relative (%) et le signal de sortie (mA ou V).

## 2. Conditions expérimentales

### 2.1. Conditions opératoires

Dans le cadre de la validation du modèle numérique à l'échelle intermédiaire, trois essais de séchage différents ont été réalisés dans la maquette expérimentale. Les trois essais de séchage ont été réalisés à 62 °C et à une pression absolue de 200 mbar.

Dans un premier temps, un premier essai de séchage (essai 1) réalisé avec la boue B ( $X_0 = 380\%$ ) est lancé à une hauteur de remplissage de 23,5 cm, soit 83 % de la hauteur disponible de la cuve. L'objectif de l'essai 1 est de valider le modèle numérique à l'échelle de la maquette en comparant les résultats de l'expérience et des simulations.

Le deuxième essai de séchage (essai 2) est consacré à l'évaluation de l'humidité relative de l'atmosphère entourant la boue pendant le séchage, puisque le capteur d'humidité relative a été défaillant lors de l'essai 1. Cet essai est effectué sur l'effluent de boue (solution saline résultant de la centrifugation de la boue synthétisée) et la hauteur de remplissage est de 14 cm.

Le troisième essai de séchage (essai 3) de la boue B ( $X_0 = 380 \%$ ) est réalisé avec une hauteur de remplissage de 7,1 cm, soit 25 % de la hauteur disponible de la cuve, à 62 °C et 200 mbar de pression absolue. Cet essai de séchage sert à déterminer le terme cinétique d'évaporation à l'échelle du laboratoire, qui sera introduit dans le modèle de séchage à l'échelle du laboratoire.

## 2.2. Propriétés de l'atmosphère

L'humidité relative de l'air ambiant est une donnée d'entrée nécessaire pour le modèle numérique de séchage et doit être déterminée. L'humidité relative peut être déterminée selon deux approches principales : par une mesure directe pendant l'expérience de séchage (essai principal) à l'intérieur de la cuve, ou par une détermination théorique basée sur un essai supplémentaire en cas d'échec/impossibilité d'acquisition des données du test principal. L'approche de la détermination théorique suppose que l'humidité relative est constante pendant l'essai de séchage, et est déterminée sur la base de l'équation de diffusion (équation de Fick) de la vapeur d'eau dans le mélange gazeux comme suit :

$$\dot{n}_{av} = \frac{D_{v-a} \times A}{e} \times \frac{M}{R_{gas} \times T_h} (a_w \times P_{sat} - HR \times P_{sat}) \quad (V-1)$$

Le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans le mélange gazeux  $D_{v-a}$  est déterminé expérimentalement sur la base de l'essai supplémentaire, pendant lequel le capteur  $HRT$  fonctionne correctement.  $\dot{n}_{av}$  ( $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$ ) est le flux massique d'évaporation moyen dans l'essai de séchage principal.  $A$  et  $e$  sont respectivement la surface d'échange de la boue et la distance entre la surface de la boue et le capteur dans l'essai principal.  $M$  ( $18 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $R_{gas}$  ( $8,314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ) et  $T_h$  sont respectivement la masse molaire de l'eau, la constante des gaz parfaits et la température extérieure chaude.  $P_{sat}$  (mbar) est la pression de vapeur saturante.  $a_w$  (-) et  $HR$  (%) sont respectivement l'activité d'eau de la boue et l'humidité relative dans le mélange gazeux. Ici, l'activité d'eau de la boue est considérée comme égale à un, ce qui est vrai tant qu'il y a encore de l'eau libre dans la boue. En outre, la température de la boue et du mélange gazeux est

considérée égale à  $T_h$ .

### 2.3. Terme de cinétique d'évaporation

Puisqu'il est nécessaire de déterminer le terme de cinétique d'évaporation  $K_{vap}$  à l'échelle de la maquette expérimentale remplie à 83 % (le cas de l'essai 1), un nouveau test de séchage est donc effectué sur la boue B (essai 3). En effet, il n'est pas possible d'utiliser le même essai de séchage (essai 1) pour déterminer le terme  $K_{vap}$  et l'utiliser comme données d'entrée pour simuler l'essai 1. Ceci ne permettrait pas de valider le modèle de séchage. En outre, le  $K_{vap}$  du modèle de séchage à l'échelle de la maquette (essai 1) n'a pas pu être déterminé sur la base de la cinétique des tests de séchage d'échantillons de boue A de 30 g. Puisqu'il a été constaté que les flux massiques de 30 g et les essais de la maquette ne sont pas comparables. Cela pourrait être dû aussi à la grande différence d'échelle. Le troisième essai de séchage (essai 3) est donc utilisé pour déterminer le  $K_{vap}$ . Cette valeur est ensuite utilisée pour définir la cinétique d'évaporation de l'essai 1 qui est introduite dans le modèle numérique pour simuler le premier essai (essai 1). Cette définition est basée sur l'hypothèse de l'égalité des flux massiques ( $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$ ) entre les deux essais 1 et 3. Cette hypothèse de l'égalité des flux massiques entre les deux essais va être vérifiée expérimentalement. Le  $K_{vap}$  ( $\text{s}^{-1}$ ) de l'essai 1 est déterminé à partir des résultats de l'essai 3 comme suit :

$$K_{vap1} = \frac{m_{d3}}{m_{d1}} K_{vap3} \quad (\text{V-2})$$

Où "1" et "3" désignent les numéros des essais.  $K_{vap}$  et  $m_d$ , sont respectivement le terme de cinétique d'évaporation et la masse sèche de la boue B

## 3. Résultats expérimentaux de la maquette expérimentale à l'échelle du laboratoire

### 3.1. Premier essai de séchage

#### 3.1.1. Cinétiques de séchage

Figure V-7 et Figure V-8 montrent respectivement l'évolution de la masse nette et de la teneur en eau spécifique  $X/X_0$  mesurées lors du premier essai de séchage (essai 1) de la boue B. Il est

clairement visible que ces deux courbes suivent la même tendance en fonction du temps. La masse initiale de la boue étant de 8,69 kg (hauteur de 23,5 cm), décroît au cours du temps jusqu'à atteindre une masse sèche finale de 1,8 kg après 84 jours. La teneur initiale en eau  $X_0$  de la boue est de 380 % (soit 3,8 kg d'eau. kg<sup>-1</sup> de solide). La courbe de la teneur en eau spécifique (Figure V-8) est divisée en trois parties distinctes (1, 2 et 3). La première partie (1) apparait au début de la courbe de séchage de 0 à 2 jours, est courte et exprime une très légère pente qui reflète la période de préchauffage des boues. La deuxième partie (2) consiste en une réduction rapide de la teneur en eau spécifique, jusqu'à atteindre une valeur de  $X/X_0 = 0,004$  après 80 jours de séchage. Au-delà de cette valeur commence la troisième partie (3), où la teneur en eau spécifique diminue légèrement jusqu'à atteindre l'équilibre ( $X_e/X_0 = 0,0005$  correspondant à une teneur en eau  $X_e = 0,002$ ) après 84 jours.

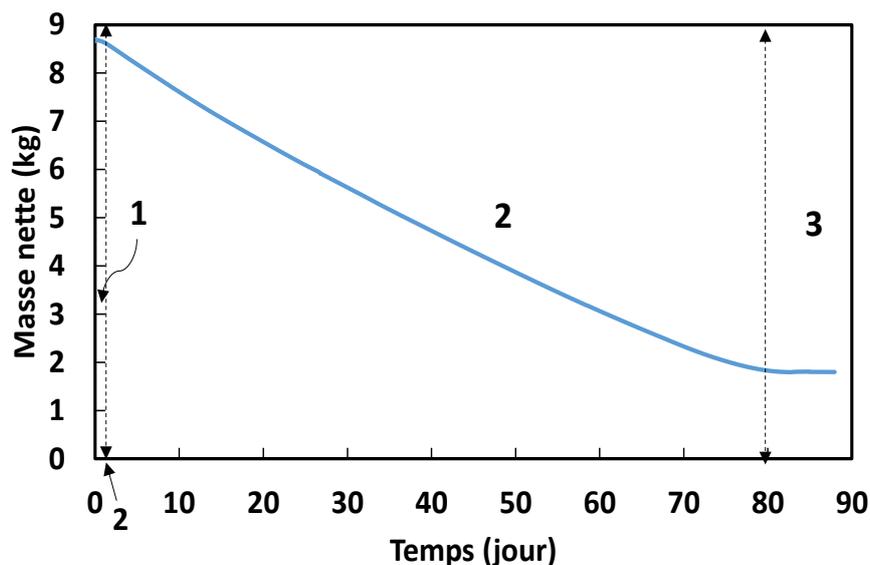


Figure V-7 : Évolution de la masse nette de la boue B dans la cuve au cours du temps – essai 1.

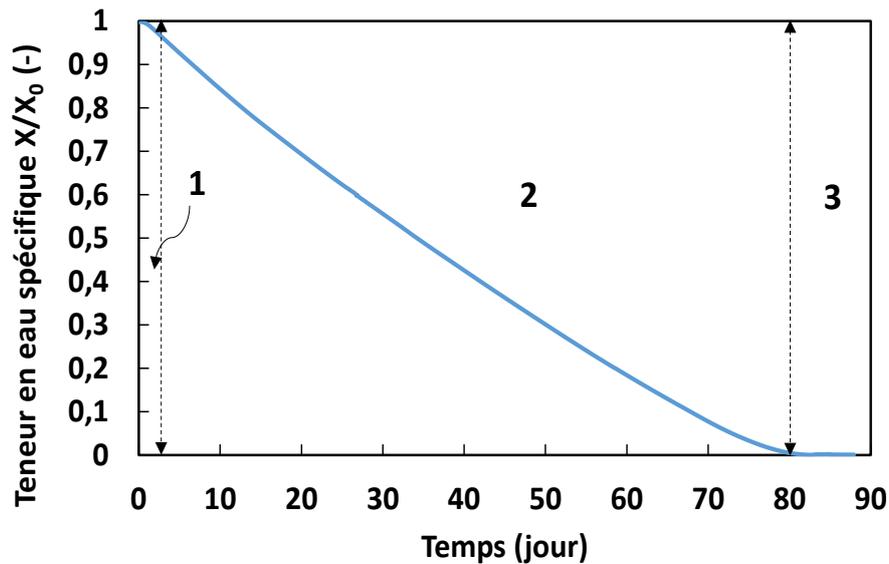


Figure V-8 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue B dans la cuve au cours du temps - essai 1.

Figure V-9 montre l'évolution de la vitesse de séchage spécifique  $d(X/X_0)/dt$  ( $s^{-1}$ ) en fonction de la teneur en eau spécifique  $X/X_0$  (-) pour le premier essai de séchage (essai 1). La courbe de la vitesse de séchage spécifique est divisée en trois zones principales : zone de préchauffage, zone à vitesse de séchage constante et zone à vitesse de séchage décroissante. La première zone (0-1) correspond à la période de préchauffage des boues ; elle a lieu au début du séchage pendant une courte période. La période de préchauffage entraîne une augmentation du taux de séchage spécifique de zéro au début (0 jour,  $X/X_0 = 1$ ) à sa valeur maximale de  $20 \times 10^{-8} s^{-1}$  après 2 jours ( $X/X_0 = 0,99$ ). Ensuite, une courte période de séchage à vitesse constante (zone 1-2) apparaît à partir de  $X/X_0 = 0,99$  et se termine à la première valeur critique de la teneur en eau spécifique  $X_{crit}/X_0 = 0,92$  (de 2 à 5,4 jours). Cette période reflète l'évaporation du film d'eau libre de la surface de séchage de la boue (surface d'échange supérieure). L'eau évaporée pendant la période à vitesse constante est soit présente sur la surface extérieure de la boue, soit fournie par la solution interstitielle de la boue. Cette période se poursuit aussi longtemps que l'eau libre est fournie à la surface à un débit compensant l'évaporation. Les résistances de transfert sont alors dues presque exclusivement à la couche limite externe. La vitesse de séchage

dépend donc principalement des conditions extérieures, c'est-à-dire de l'humidité relative et de la température de l'agent de séchage (mélange air/vapeur), de la pression et de la surface d'échange exposée au séchage.

Par la suite, la période à vitesse décroissante (zone 2-4) commence lorsque la vitesse de séchage diminue. Cette période est la plus longue, elle commence après 5,4 jours et se poursuit jusqu'à la fin du séchage après 84 jours (soit 94 % de la durée de séchage totale). Elle correspond au stade où les résistances internes aux transferts de chaleur et de masse limitent la cinétique. La période à vitesse décroissante est divisée en deux parties : la zone 2-3 et la zone 3-4. La zone 2-3 commence lorsque le flux d'eau libre fourni à la surface n'est plus aussi rapide que le flux évaporé ( $X_{cr1}/X_0 = 0,92$ ). Le front de séchage qui se trouvait sur la surface extérieure de séchage, pénètre à l'intérieur du matériau tout en éliminant l'eau libre restante. Une fois qu'il n'y a plus que de l'eau liée, la deuxième partie de la décélération commence (zone 3-4) à la deuxième valeur critique de la teneur en eau spécifique  $X_{cr2}/X_0 = 0,1$ .

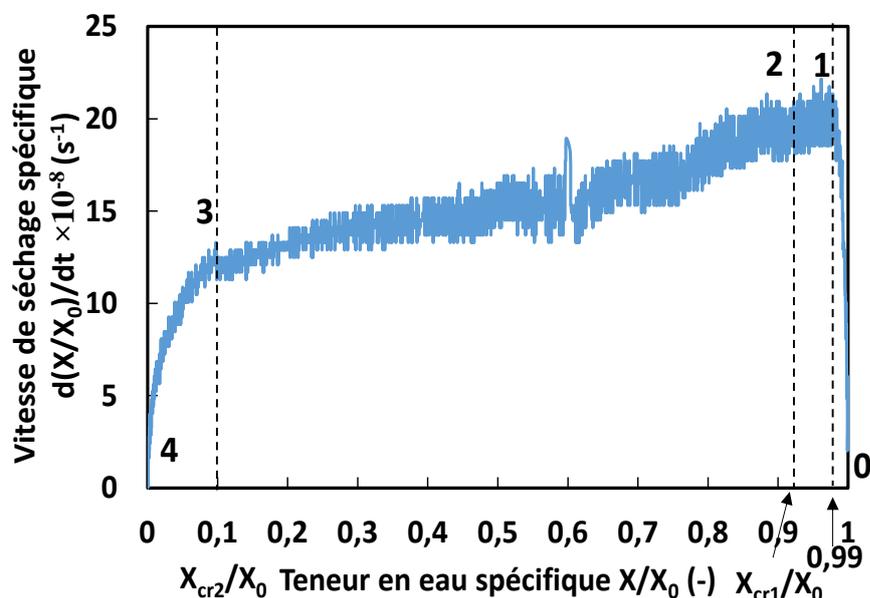


Figure V-9 : Évolution de la vitesse de séchage spécifique avec la teneur en eau spécifique.

Cette partie correspond à l'étape finale du séchage, avec les valeurs de vitesse de séchage spécifique les plus faibles et la pente la plus forte, ce qui signifie que l'évaporation de l'eau

devient très difficile à la fin du séchage lorsque la teneur en eau spécifique est faible. Le séchage est terminé lorsque la boue atteint sa teneur en eau d'équilibre dans les conditions opératoires considérées.

### 3.1.2. Évolution des conditions opératoires

Dans ce paragraphe, l'évolution des paramètres opératoires de l'essai 1 de séchage est présentée. Pendant le séchage, la pression absolue, l'humidité relative et la température à l'intérieur de la cuve ont été mesurées et enregistrées en continu. La Figure V-10 montre l'évolution de la pression absolue du mélange gazeux à l'intérieur de la cuve au cours du séchage. La pression atmosphérique est tombée instantanément à une pression absolue de 200 mbar au début du processus de séchage en raison du vide partiel imposé.

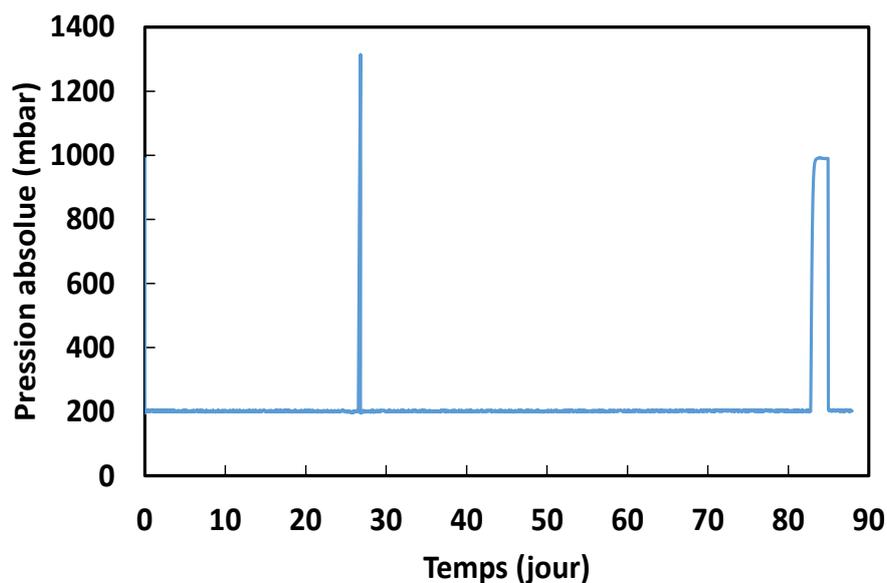


Figure V-10 : Évolution de la pression absolue du ciel gazeux dans la cuve au cours du temps – essai 1.

Cette valeur a été maintenue constante tout au long du séchage, grâce à la pompe et au système de contrôle de la pression de l'étuve. Les valeurs de pression se situaient entre 195 et 205 mbar, de sorte que l'augmentation de la pression absolue due à l'évaporation a été contrecarrée par le système de pompage qui l'abaisse à nouveau. Deux incidents ont provoqué un déséquilibre de la pression pendant l'expérience : au 27<sup>ème</sup> jour lors d'une coupure du courant électrique qui a

duré 4 heures et à la fin de l'expérience de séchage entre les jours 83 et 84 à cause de l'arrêt soudain du système de pompage. Ces deux déséquilibres ne semblent pas affecter fortement la cinétique de séchage, car le premier déséquilibre était relativement court et le second s'est produit après que la boue ait atteint sa teneur en eau d'équilibre.

L'évolution de l'humidité relative du mélange gazeux à l'intérieur de la cuve (essai 1) n'a pas pu être suivie en raison de la défaillance du capteur, qui donnait une valeur d'humidité relative de 100 % pendant toute la période de séchage. Après démontage, le capteur d'humidité relative capacitif utilisé s'est avéré défectueux, en raison d'une attaque corrosive en atmosphère salée. Il semble s'être saturé au début de l'expérience et n'a pas pu rétablir une information précise sur la valeur de l'humidité relative.

L'évolution de la température à l'intérieur de la boue et dans le mélange gazeux pendant le séchage est représentée sur la Figure V-11. Les profils de température, enregistrés par l'arbre des thermocouples à l'intérieur de la boue, sont divisés en quatre groupes principaux. Ces derniers regroupent les thermocouples de même branche (même hauteur) ou de hauteur proche. Les thermocouples 1, 2, 3 et 4 (à 5 cm du fond de la cuve) forment le premier groupe, les thermocouples 6, 7, 8 (à 10 cm du fond) et 9 (à 14 cm du fond) forment le deuxième groupe ; les thermocouples 10, 11, 12 et 13 (à 17 cm du fond) forment le troisième groupe. Les trois groupes donnent accès à l'évolution de la température respectivement de la partie inférieure, moyenne et supérieure du volume initial des boues. En plus de ces trois groupes de thermocouples initialement immergés dans la boue, le thermocouple 14, situé au sommet de l'arbre, enregistre la température du mélange gazeux à l'interface initiale boue/atmosphère. Le thermocouple 5 n'a pas fonctionné, il a été rompu dès le début pendant la période de remplissage des boues.

Le premier, le deuxième et le troisième groupe de thermocouples montrent que la température de la boue augmente fortement, passant de sa température initiale (20 °C) à 58 °C

en moins de 2 jours pendant la période de préchauffage. Cette augmentation relativement forte de la température est due à la période de préchauffage, lorsque la température augmente à l'intérieur du matériau chauffé jusqu'à ce que l'eau commence à s'évaporer [1, 2]. Par la suite, la température diminue légèrement dans le premier, le deuxième et le troisième groupe, passant respectivement de 58 à 56,5 °C, au cours des 50, 26 et 18 jours suivants. Cette légère baisse de température pourrait être due à l'établissement de l'équilibre thermique local, qui est lié au déclenchement de l'évaporation locale. Elle pourrait également être due à une quantité de chaleur e fournie par l'étuve insuffisant.

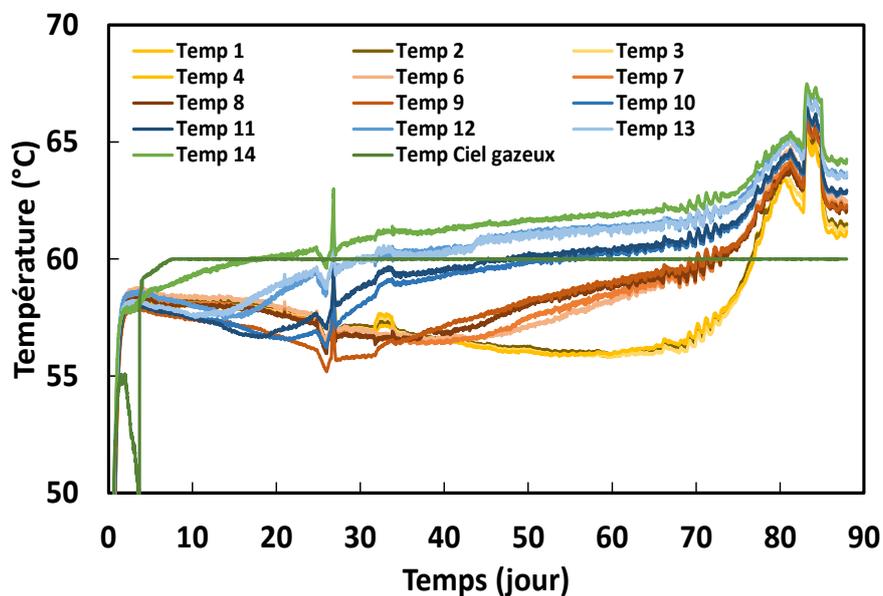


Figure V-11 : Évolution de la température à l'intérieur de la boue B et dans le ciel gazeux de la cuve au cours du temps – essai 1.

La température dans le premier, le deuxième et le troisième groupe est ensuite maintenue constante à 56,5 °C, entre 50 et 70, 26 et 40 et 18 et 20 jours respectivement. Les boues sont donc maintenues localement à une température constante dans les premier, deuxième et troisième groupes pendant 20, 14 et 2 jours respectivement. Ces durées reflètent le temps de séchage pendant lequel la partie de la boue était humide et contenait de l'eau libre. Une fois qu'il n'y a plus d'eau libre, la température augmente progressivement jusqu'à atteindre la température de l'environnement extérieur chaud. En effet, la température commence à

augmenter jusqu'à atteindre son maximum (63 °C pour le premier et le deuxième groupe et 64 °C pour le troisième groupe) après 82 jours lorsque le séchage se termine. Il est important de noter que le troisième groupe de thermocouples, situé dans la partie supérieure du support de l'arbre, indique une augmentation relativement précoce et importante de la température par rapport au premier et au deuxième groupe. Ceci est dû à sa position initiale près de la surface de la boue, et au phénomène de retrait qui s'est produit et qui a conduit à la libération de ce groupe de thermocouples de la matrice solide de la boue. Une légère baisse de température à 62 °C est mesurée à la fin de l'expérience de séchage après 83 jours pour les trois groupes. Le quatorzième thermocouple (TC 14) situé dans le mélange gazeux, montre une forte augmentation de la température jusqu'à 58 °C au cours des deux premiers jours, puis une augmentation progressive de la température tout au long de l'expérience de séchage pour atteindre 64 °C après 84 jours. Pendant ce temps, le capteur ROTRONIC montre une tendance irrégulière de l'évolution de la température au début. Après que la température mesurée ait augmenté le premier jour, elle a soudainement diminué fortement jusqu'à 48 °C, puis a augmenté à nouveau pour atteindre 60 °C après 7 jours et reste constante jusqu'à la fin de l'expérience. Cela confirme le comportement défectueux du capteur de température et d'humidité relative (ROTRONIC). En général, deux pics soudains et irréguliers apparaissent dans les profils de température mesurés, le premier pic (qui dure quatre heures au jour 27) est dû à la coupure électrique et le second (qui dure deux jours entre le jour 83 et le jour 84) est dû à un arrêt du système de pompage.

### 3.2. Deuxième et troisième essais de séchage

Le deuxième essai de séchage (essai 2) est effectué sur l'effluent de boue afin de déterminer théoriquement l'humidité relative dans l'essai principal de séchage de la boue B (essai 1). D'après le résultat obtenu de l'essai 2, la valeur de l'humidité relative dans le mélange gazeux à l'intérieur de la cuve se maintient à 41 % pendant la majeure partie du temps de l'essai de

séchage. Par conséquent, en utilisant l'Équation (V-1), la valeur calculée de l'humidité relative dans le mélange gazeux en contact avec la boue B pendant l'essai 1 est de 53 %. On suppose que cette valeur est constante dans le mélange gazeux pendant la modélisation du séchage.

En revanche, les résultats expérimentaux du troisième essai de séchage (essai 3) sont présentés ci-dessous. L'évolution de la teneur en eau spécifique au cours de l'essai 3 est similaire à celle du premier test de séchage, mais avec une pente différente. Le temps de séchage nécessaire pour atteindre la teneur en eau spécifique d'équilibre  $X_{eq}/X_0$  (presque 0) est de 23 jours (Figure V-12).

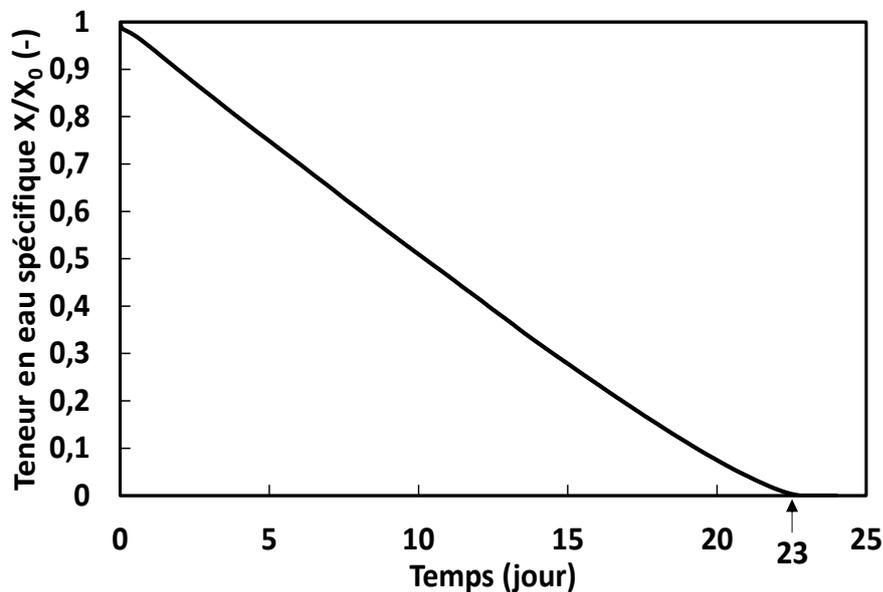


Figure V-12 : Évolution de la teneur en eau spécifique de la boue B dans la cuve au cours du séchage - essai 3.

Les résultats expérimentaux du troisième essai de séchage (essai 3) ont permis de déterminer le terme de cinétique d'évaporation dans l'essai 1 ( $K_{vap1}$ ). Une différence de flux massiques est enregistrée au début du séchage entre les essais 1 et 3 (à des teneurs spécifiques en eau élevées) (Figure V-13). Ceci pourrait s'expliquer par la constitution d'un important film d'eau à la surface de la boue dans l'essai 1, généré par décantation de la boue et qui s'évapore facilement. Par ailleurs, lorsque les deux courbes se superposent, l'égalité des flux massiques ( $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$ ) est supposée entre les deux essais 1 et 3 bien qu'ils aient des volumes différents. Le terme de

cinétique d'évaporation  $K_{vap1}$  de l'essai 1, calculé par l'Équation (V-2), est ensuite introduit comme paramètre d'entrée, dans le modèle numérique de séchage afin de simuler le séchage de la boue B dans la maquette. Les zones 1 et 2 de la Figure V-13 sont respectivement les périodes de séchage avec et sans eau libre, sur la base de la courbe de taux de séchage typique décrite précédemment au chapitre II.

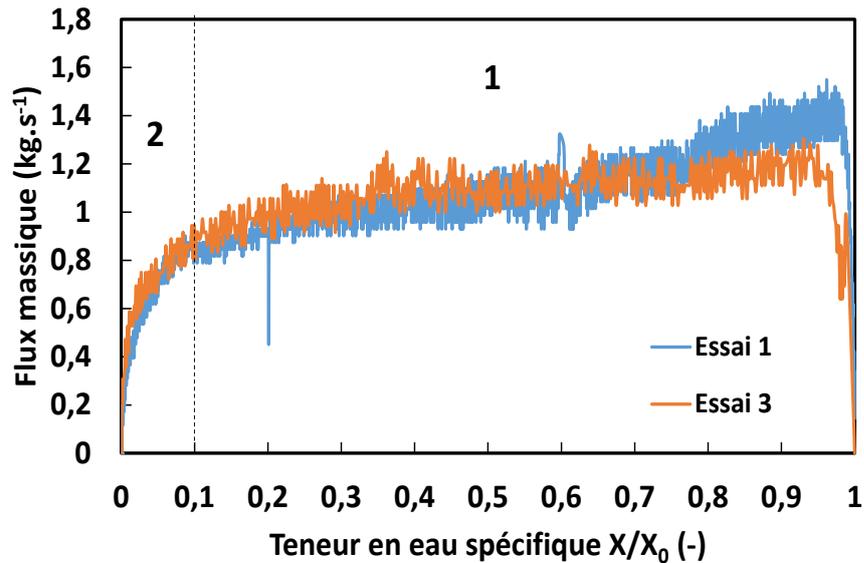


Figure V-13 : Évolution des flux massiques lors des essais de séchage 1 et 3 de la boue B à 65 °C et 200 mbar.

Figure V-14 montre l'évolution de l'humidité relative à l'intérieur de la cuve pendant l'essai 3 de séchage, en fonction de la teneur en eau spécifique globale de la boue B. La valeur initiale de l'humidité relative est supérieure à 45 %, elle diminue fortement pour atteindre 20 % lors de la première action d'aspiration exercée par la pompe à vide (zone 1). Par la suite, l'humidité relative augmente jusqu'à atteindre une valeur d'équilibre égale à 42 % à  $X/X_0 = 0,96$  (zone 2). Elle diminue doucement au fur et à mesure du séchage, jusqu'à atteindre une valeur de 31 % à une très faible teneur en eau spécifique ( $X/X_0 = 0,04$ ) (zone 3). La zone 3 est la période la plus longue, elle prend 20 jours sur les 23 jours de séchage total. Cette faible diminution pourrait être due à l'augmentation de l'espace du mélange gazeux à l'intérieur de la cuve et à la réduction de la teneur en eau de la boue (réduction de l'eau libre). En dessous de

$X/X_0 = 0,04$ , l'humidité relative diminue fortement jusqu'à 15 %. Cette forte diminution pourrait être le résultat de l'évaporation intégrale de la quantité d'eau initialement présente dans la boue (perte d'eau libre et d'eau liée).

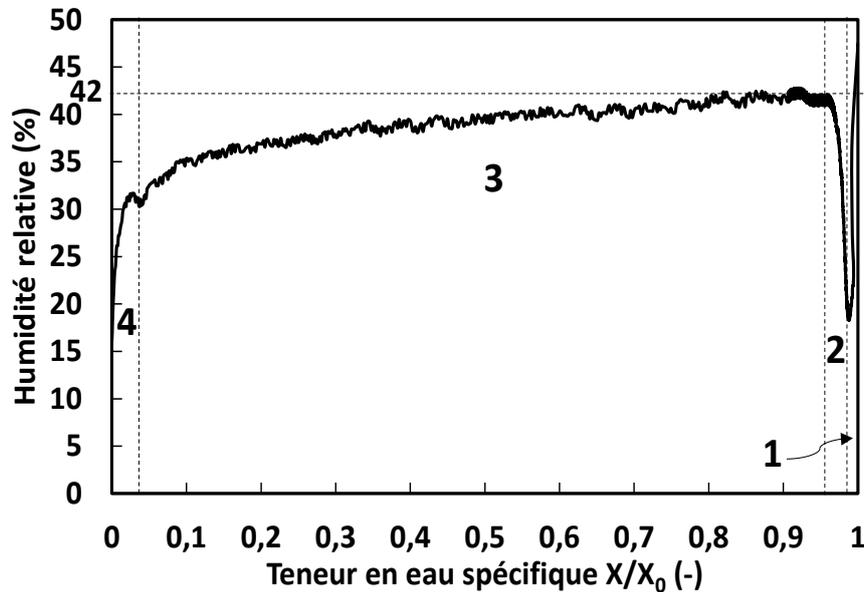


Figure V-14 : Évolution de l'humidité relative à l'intérieur de la cuve au cours du séchage en fonction de la teneur en eau spécifique - essai 3.

### 3.3. Retrait et cristallisation

Au cours des essais de séchage dans la maquette (1 et 3), la boue B a rétréci dans les directions axiale et radiale, comme le montrent les Figure V-15 a et b. Le volume séché est divisé en deux ou trois parties d'un cylindre, probablement en raison de la présence de l'arbre de capteurs. En réunissant ces parties, la boue de l'essai 1 a une hauteur moyenne de 9 cm ( $h_{ave}/h_0 = 38\%$ ) et un diamètre équivalent de 10,8 cm ( $d_{eq}/d_0 = 54\%$ ) (Figure V-15a). La boue sèche a donc un volume final de 0,825 L, c'est-à-dire  $V/V_0 = 11\%$ . De même, la boue de l'essai 3 a une hauteur moyenne de 2,8 cm ( $h_{ave}/h_0 = 39\%$ ) et un diamètre équivalent de 10,4 cm ( $d_{eq}/d_0 = 52\%$ ) (Figure V-15b). La boue sèche a donc un volume final de 0,229 L, soit  $V/V_0 = 11\%$ . De plus, le phénomène de retrait observé sur des échantillons de boue B de 30 g a conduit à des résultats similaires. Selon les résultats présentés au chapitre IV, les rapports des hauteurs et des diamètres des échantillons de 30 g de boues B à la fin du séchage sont respectivement  $h_{ave}/h_0 = 38\%$  et

$d_{eq}/d_0 = 54 \%$ . Par conséquent, le phénomène de retrait est indépendant de la quantité de boue. Cela confirme le comportement homogène de la boue pendant le séchage.

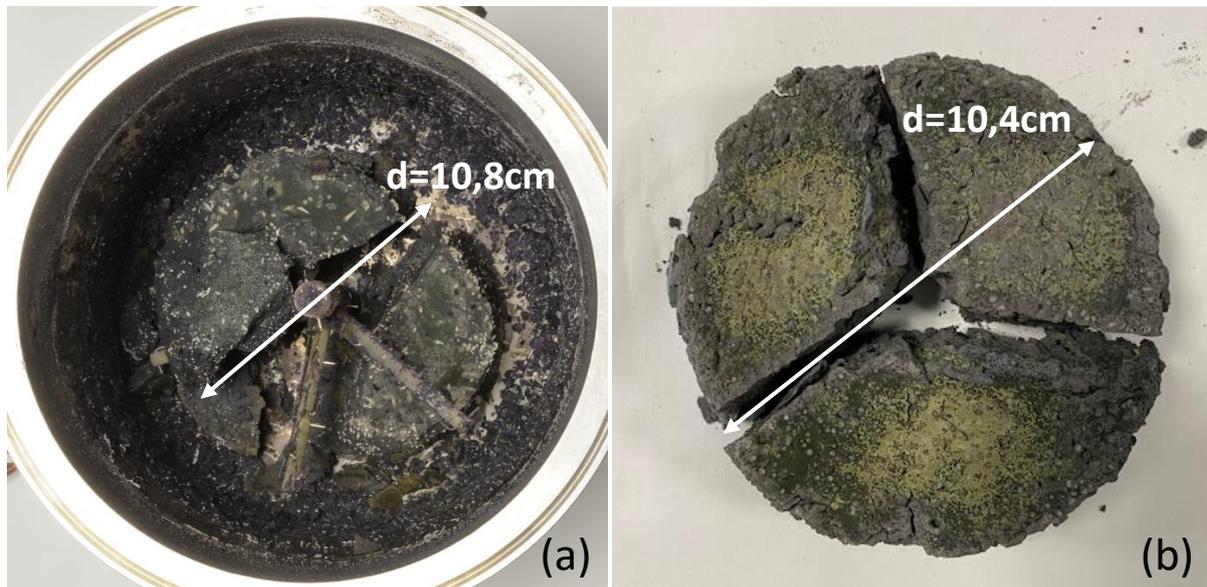


Figure V-15 : Vue supérieure de la boue sèche dans la cuve à la fin du séchage de (a) l'essai 1 et (b) l'essai 3.

D'autre part, des cristaux blancs et jaunes en forme d'aiguilles sont produits sur la surface de la boue sèche. Le phénomène de cristallisation est mis en évidence par une cristallisation en sub-florescence dans la boue B. L'identification des cristaux par diffraction des rayons X de la boue séchée de l'essai 1 (Figure V-16) révèle la formation de nouveaux cristaux de darapskite ( $\text{Na}_3\text{SO}_4\text{NO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), thenardite ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) et nitratine ( $\text{NaNO}_3$ ), ce qui correspond à la composition en sels solubles de la solution. Au contraire, le phénomène de cristallisation n'a pas été observé dans les petits échantillons de boue de 30 g. Cela est probablement dû à la quantité moins abondante de sels dissous dans les petits échantillons. Par conséquent, les cristallisations ne peuvent pas être distinguées visuellement. Lors du séchage dans la cuve, les concentrations de sels solubles augmentent en raison de l'évaporation. Lorsque les seuils de solubilité sont atteints, les sels précipitent, ce qui met en évidence le phénomène de cristallisation qui affecte également le séchage de la boue en bloquant ou en augmentant la vitesse d'évaporation selon la taille des pores et le type de sel. Toutefois, en raison de la

solubilité de ces minéraux la cristallisation ne se produit qu'à une très faible teneur en eau, c'est-à-dire juste à la fin du séchage. Le fait de négliger ce phénomène dans la modélisation n'entraîne pas une incohérence significative entre les simulations et les résultats expérimentaux.

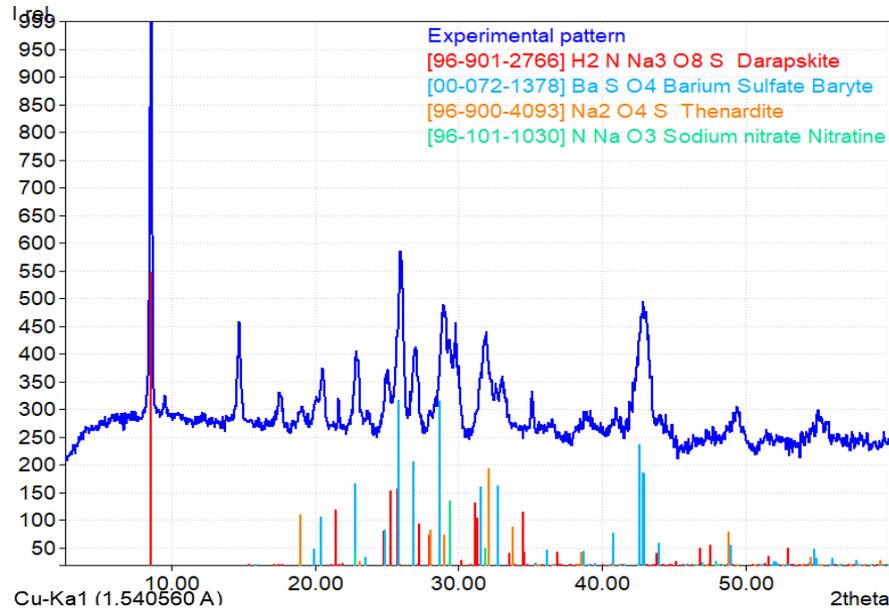


Figure V-16 : Diffractogramme des rayons X de la poudre de sels précipités par efflorescence sur l'échantillon de boue sèche. La darapskite, la thénardite et la nitratine résultent de la cristallisation de sels solubles au niveau de la boue en forme de cake à l'état le plus sec.

#### 4. Conclusions

Dans un premier temps, une description détaillée de la maquette expérimentale à l'échelle du laboratoire a été abordée dans ce chapitre. Les principales parties, les types de capteurs utilisés et la station d'acquisition et de traitement des signaux ont été décrits. Dans un deuxième temps, trois essais de séchage ont été réalisés. Le premier et le troisième essai de séchage consistent à sécher la boue B. Le premier essai de séchage est utilisé pour valider le modèle numérique de séchage en comparant les résultats expérimentaux avec les simulations numériques. Le deuxième et le troisième essai de séchage ont permis de déterminer l'humidité relative du mélange gazeux et le terme de cinétique d'évaporation respectivement, deux paramètres d'entrée nécessaires au modèle de séchage. Les résultats expérimentaux du premier essai de séchage de la boue B dans la cuve ont été présentés et interprétés. L'évolution de la cinétique de séchage

suit la tendance théorique. Elle est divisée en trois parties distinctes correspondant aux périodes de préchauffage, de vitesse constante et de vitesse décroissante. L'évolution de la température globale dans la boue suit également la tendance théorique générale. Elle augmente fortement depuis sa température initiale à la température du bulbe humide qui est légèrement inférieure à celle de l'environnement extérieur. Elle reste ensuite constante, jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'eau libre puis elle augmente à nouveau progressivement jusqu'à atteindre la température chaude extérieure. Les résultats expérimentaux seront utilisés dans le prochain chapitre pour valider le modèle numérique de séchage de la boue B à l'échelle du laboratoire. De plus, le phénomène de retrait apparaît indépendant du volume de boue traité, ce qui confirme le comportement homogène de la boue pendant le séchage.

## Référence

- [1] Léonard, A. Étude Du Séchage Convectif De Boues De Station D'épuration - Suivi De La Texture Par Microtomographie À Rayons X, *Université De Liège*, **2002**.
- [2] Heydari, M.; Khalili, K.; Ahmadi-Brooghani, S. Y. More Comprehensive 3D Modeling of Clay-like Material Drying. *AIChE Journal*, **2018**, *64* (4), 1469–1478. <https://doi.org/10.1002/aic.16027>.

## VI. Modélisation du séchage

Dans le cadre de l'étude du comportement des boues pendant le processus de séchage, il est essentiel de fournir des informations permettant de définir le temps de séchage au-delà duquel la siccité finale visée sera atteinte dans tout le conteneur. Afin de prédire le comportement des boues pendant le séchage, une modélisation numérique est réalisée en utilisant COMSOL-Multiphysics (version 3.5 a) pour simuler les mécanismes impliqués, compte tenu de l'étude bibliographique et des résultats expérimentaux. Ces mécanismes sont pris en compte : transferts de chaleur et de masse ainsi que le phénomène mécanique de retrait. Les caractéristiques intrinsèques de la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) et de la boue B ( $X_0 = 380 \%$ ) présentées dans le chapitre IV constituent les données d'entrée pour les modèles numériques de séchage.

Dans ce chapitre, un modèle thermo-hydro-mécanique (modèle 1) est présenté. Ce modèle simule le séchage d'un échantillon de boue A de 30 g dans un pot. La validation du modèle numérique, est basée sur les données cinétiques acquises sur des échantillons de 30 g de boue A (chapitre IV), sur lesquels le phénomène de retrait volumique a été observé. L'importance de la prise en compte du phénomène de retrait dans la modélisation est démontrée, en comparant les simulations qui ont été réalisées avec et sans retrait.

La seconde étape consiste à appliquer les équations couplées du modèle thermo-hydro-mécanique avec la géométrie de la cuve de la maquette expérimentale (modèle 2) remplie de boue B. Le but de cette étape est d'évaluer l'impact du changement d'échelle sur la précision de la simulation, ainsi que de disposer d'un modèle à l'échelle du laboratoire (modèle 2) validé pour prédire le temps de séchage nécessaire.

Pour développer les modèles numériques de séchage (1 et 2), le logiciel COMSOL-Multiphysics version 3.5a est utilisé pour résoudre les équations aux dérivées partielles (station de calcul DELL Précision 7920 avec 128 Go de RAM). Une analyse statistique est effectuée

pour déterminer l'accord entre les valeurs du modèle et les valeurs expérimentales sur la base du  $R^2$ ,  $RMSE$  ou du pourcentage d'erreur relatif moyen  $E$ , estimé par l'Équation (VI-1) :

$$E(\%) = \frac{100}{N} \sum \frac{|X_{exp} - X_{sim}|}{X_{exp}} \quad (VI-1)$$

Une erreur relative moyenne inférieure à 10 % est choisie pour estimer une bonne concordance entre la modélisation et les résultats expérimentaux.

### 1. Modèle de séchage thermo-hydro-mécanique à petite échelle (modèle 1)

Une modélisation axisymétrique bidimensionnelle par volumes finis est effectuée pour prédire les transferts simultanés de chaleur et de masse pendant le séchage d'un échantillon de 30 g de boue A dans un pot cylindrique. Les modules utilisés dans le cadre de COMSOL-Multiphysics pour simuler les transferts de chaleur et de masse sont respectivement "Transfert de chaleur dans les solides" et "Coefficient de EDP". Le retrait des boues est simulé à l'aide du module "Géométrie déformée". Les principales hypothèses du modèle thermo-hydro-mécanique (modèle 1) sont les suivantes :

1. La géométrie de la boue est considérée comme un cylindre axisymétrique 2D.
2. La teneur en eau et la répartition des températures initiales sont considérées comme uniformes.
3. La boue est d'abord considérée comme un milieu poreux saturé. Ainsi, la fraction initiale du volume de gaz est nulle dans tout le volume de la boue.
4. Les flux de masse et de chaleur sont considérés comme axisymétriques en 2D.
5. Le transport de l'eau est décrit par l'équation de Richards modifiée avec le coefficient de retrait  $\beta$ , qui prend en compte le phénomène de retrait des boues.
6. L'évaporation de l'eau est décrite par une équation cinétique qui suppose que l'eau s'évapore localement. La vitesse d'évaporation est proportionnelle à un gradient de pression entre la pression de vapeur locale à la surface ( $a_w \times P_{sat}$ ) et la pression de vapeur dans le milieu

environnant ( $P_G$ ).

7. Le transfert de chaleur est assuré par conduction thermique et dissipé par évaporation.
8. L'humidité relative de l'air ambiant est considérée comme constante dans le temps.
9. Les pores des boues sont considérés comme suffisamment grands pour être reliés à l'air ambiant, de sorte que la pression de vapeur d'eau dans la fraction gazeuse de chaque volume fini est égale à la pression de vapeur d'eau  $P_G$  dans l'air ambiant.
10. Les propriétés physiques des boues sont considérées dépendantes de la teneur locale en eau.
11. La déformation géométrique due au retrait volumétrique est supposée être axisymétrique en 2D.
12. On suppose que la masse volumique apparente des boues dépend de la teneur en eau et de la variation du volume des boues.
13. Aucune réaction chimique n'a lieu pendant le processus de séchage. L'adsorption/désorption de l'eau sur la matière solide, ainsi que toute autre interaction eau-solide spécifique, sont négligées.

#### 1.1. Équations constitutives

Sur la base des hypothèses ci-dessus, le système d'équations aux dérivées partielles (EDP) est composé d'un bilan de masse dans la phase aqueuse et d'un bilan énergétique sur la boue qui doivent tous deux être résolus dans une géométrie déformable. Les deux EDP sont couplées par le terme de taux d'évaporation dans la boue. La Figure II-1 montre les transferts de chaleur et de masse, ainsi que la réduction de volume dans la boue et au-delà de ses limites (# 1, 2, 3 et 4).

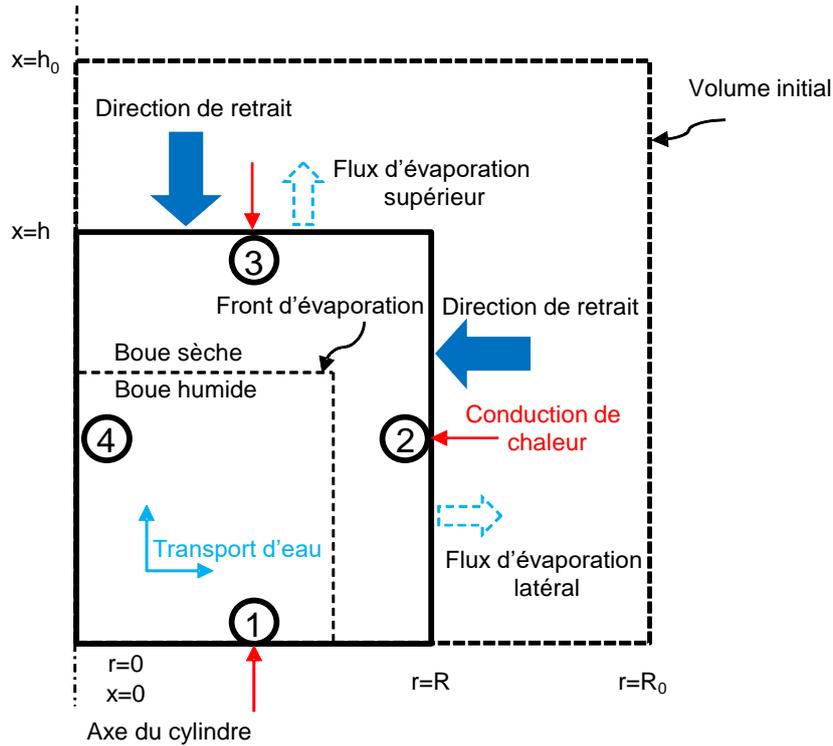


Figure VI-1 : Mécanismes de transfert de chaleur et de masse au sein de la boue avec les directions axiale et radiale du retrait.

### 1.1.1. Transfert de masse

Le transport de l'eau est représenté dans l'Équation (VI-2) par l'équation de Richards modifiée avec un coefficient de diffusion de l'eau apparent  $D_{app}(X,T)$  qui dépend de la teneur en eau et de la température et avec un coefficient de retrait  $\beta$  [1, 2].  $D_{app}(X,T)$  et  $\beta$  pour la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) ont été déterminés au chapitre IV.

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \nabla \cdot \left( \frac{D_{app}}{\left(1 + \beta \frac{X}{X_0}\right)^2} \nabla X \right) - \frac{\dot{m}}{\rho_L} \quad (\text{VI-2})$$

$$D_{app} = 10^{-8} \times \left( 8888 - 8237 \left( \frac{X}{X_0} \right) + 31220 \times \exp \left( -30,8 \left( \frac{X}{X_0} \right) \right) \right) \times \exp \left( \frac{-26546,6}{R_{gas} T} \right)$$

$$\beta = \begin{cases} 9,1 & \text{if } 0,11 < \frac{X}{X_0} \leq 1 \\ 0 & \text{if } \frac{X}{X_0} \leq 0,11 \end{cases}$$

Où  $X = \frac{m_w}{m_d}$  (kg eau. kg<sup>-1</sup> solide) est la teneur en eau,  $m_w$  (g) et  $m_d$  (g) sont respectivement la masse d'eau et la masse sèche ;  $t$  (s) est le temps ;  $\dot{m}$  (kg. m<sup>-3</sup>. s<sup>-1</sup>) est le taux d'évaporation,  $\rho_L = 1000$  (kg. m<sup>-3</sup>) est la masse volumique d'eau liquide et  $\nabla = [\frac{\partial}{\partial r}, \frac{\partial}{\partial x}]$ .  $R_{gas} = 8,314$  (J. mol<sup>-1</sup>. K<sup>-1</sup>) est la constante des gaz parfaits et  $T$  (°C) est la température locale dans la boue.

Le taux d'évaporation local  $\dot{m}$  (kg. m<sup>-3</sup>. s<sup>-1</sup>) est supposé proportionnel au gradient de pression entre la pression de vapeur en surface à l'interface liquide-vapeur et la pression de vapeur dans l'air ambiant [3].

$$\dot{m} = \begin{cases} K_{vap} \times \rho_L \frac{(a_w(X) \times P_{sat}(T) - P_G)}{P_G} & \text{if } X > X_e \text{ et } P_{vap} > P_G \\ 0 & \text{if } X \leq X_e \text{ ou } P_{vap} < P_G \end{cases} \quad (VI-3)$$

Où  $K_{vap}$  (s<sup>-1</sup>) est le terme de cinétique d'évaporation,  $a_w$  (-) est l'activité d'eau,  $P_{sat}$  (mbar) est la pression de vapeur à saturation,  $P_G$  (mbar) est la pression de vapeur dans l'air ambiant et  $X_e$  (kg d'eau. kg<sup>-1</sup> de solide) est la teneur en eau à l'équilibre.  $T$  (°C) est la température locale de l'interface solide-liquide qui est le facteur déterminant de la  $P_{sat}(T)$  et qui varie selon le mécanisme de transfert de chaleur détaillé ci-dessous.

La valeur de  $K_{vap}$  varie en fonction de la teneur spécifique en eau de la boue ( $X/X_0$ ) et des conditions opératoires imposées lors du séchage (pression, température et humidité relative). Sur la base des données de cinétique expérimentale, les valeurs de  $K_{vap}$  sont répertoriées dans un tableau en fonction des conditions opératoires (chapitre IV). Ce tableau est inséré dans le modèle numérique en tant que données d'entrée.

La pression de vapeur saturante  $P_{sat}$  (mbar) peut être déterminée en fonction de la température à partir de l'équation d'Antoine [4]. La pression de vapeur dans l'air ambiant dépend de la pression de vapeur saturante à sa température humide  $T$  (°C) et de son humidité relative  $HR$  (%).

$$\log_{10}(P_{sat}) = \log(1,333) + A_1 - \frac{B_1}{C_1 + T} \quad (\text{VI-4})$$

$$P_G = HR \times 1,333 \times 10^{(A_1 - \frac{B_1}{C_1 + (T + 273,15)})} \quad (\text{VI-5})$$

Où  $A_1 = 8,07$  (-),  $B_1 = 1730,63$  (K) et  $C_1 = 233,43$  (K) sont des constantes empiriques de l'équation d'Antoine spécifiques à l'eau, extraites de la littérature [4].

L'évolution de l'activité de l'eau a été précédemment déterminée dans le chapitre IV en fonction de la teneur en eau sur la base d'isothermes expérimentales de sorption de l'eau (modèle de Henderson) :

$$a_w = 1 - \exp(-0,282X^{1/1,823}) \quad (\text{VI-6})$$

La boue est initialement considérée comme un milieu poreux saturé en eau. Au cours du séchage, la boue est composée de solides, de liquides et de gaz. Les fractions volumiques de la boue doivent satisfaire l'équation suivante :

$$\theta_L + \theta_G + \theta_S = 1 \quad (\text{VI-7})$$

Comme la fraction volumique liquide  $\theta_L$  est une variable d'état (calculée à partir de la teneur en eau) et la fraction volumique solide  $\theta_S$  (-) est déterminée sur la base de la teneur en eau et de la variation du volume des boues, donc la fraction volumique du gaz  $\theta_G$  (-) peut être calculée en complément à 1. La fraction volumique du gaz est comptée car elle est considérée comme une condition nécessaire au déclenchement de l'évaporation locale. Les fractions volumiques solide et liquide pour la boue A ( $X_0 = 210$  %) sont déterminées comme suit :

$$\theta_s = \frac{\theta_{s0}}{V} = \begin{cases} \frac{\theta_{s0}}{\frac{X}{X_0} + 0,11} & ; \quad 0,11 < \frac{X}{X_0} \leq 1 \\ \frac{\theta_{s0}}{0,18} & ; \quad \frac{X}{X_0} \leq 0,11 \end{cases} \quad (\text{VI-8})$$

$$\theta_{s0} = \frac{4m_d}{\rho_s \pi d_0^2 h_0}$$

$$\theta_L = \frac{m_w}{\rho_L V} = \frac{4Xm_d}{\rho_L \pi d^2 h} \quad (\text{VI-9})$$

$$m_d = \frac{m_{t0}}{(X_0 + 1)} = \frac{\pi d_0^2 h_0}{4\rho_0(X_0 + 1)} \quad (\text{VI-10})$$

Où  $\theta_{s0}(-)$  est la fraction volumique solide initiale,  $V$  ( $\text{m}^3$ ) et  $V_0$  ( $\text{m}^3$ ) sont respectivement le volume réel et initial de la boue,  $d_0$  (m) et  $h_0$  (m) sont respectivement son diamètre et sa hauteur initiaux.  $d$  (m) et  $h$  (m) sont respectivement le diamètre et la hauteur de la boue.  $m_d$  (kg) est la masse sèche et  $m_{t0}$  (kg) est la masse totale initiale.  $\rho_s = 3400$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) est la masse volumique du solide.

### 1.1.2. Transfert de chaleur

Le transfert de chaleur dans la boue est représenté dans l'Équation (VI-11) par la loi de la conduction thermique (loi de Fourier), avec une conductivité thermique effective  $K_{eff}$  ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ) et une capacité thermique  $c_p$  ( $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ) qui dépendent de la teneur en eau locale telle que déterminée au chapitre IV. La dissipation de chaleur (Équation (VI-12)) est représentée par la chaleur latente d'évaporation  $\Delta H_{vap}$  ( $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) [5] multipliée par le taux d'évaporation.  $\rho_{app}$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) est la masse volumique apparente de la boue.

$$\rho_{app} c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (K_{eff} \nabla T) - \dot{m} \Delta H_{vap} \quad (\text{VI-11})$$

$$c_p = -2,66 \exp(-0,81X) + 3,46$$

$$K_{eff} = 0,98 \frac{X}{X_0} + 1,62$$

$$\Delta H_{vap} = 4186,8 \times (597 - 0,56T) \quad (\text{VI-12})$$

### 1.1.3. Déformation de la géométrie

Le modèle 1 simule le séchage d'un échantillon de 30 g de boue A ayant une géométrie cylindrique avec un rayon initial  $d_0 = 3,6$  cm et une hauteur initiale  $h_0 = 2,2$  cm. Les volumes finis triangulaires de Lagrange de second ordre sont sélectionnés par défaut pour créer le maillage à géométrie de boue axisymétrique 2D pour le modèle, comme le montre la Figure VI-2.

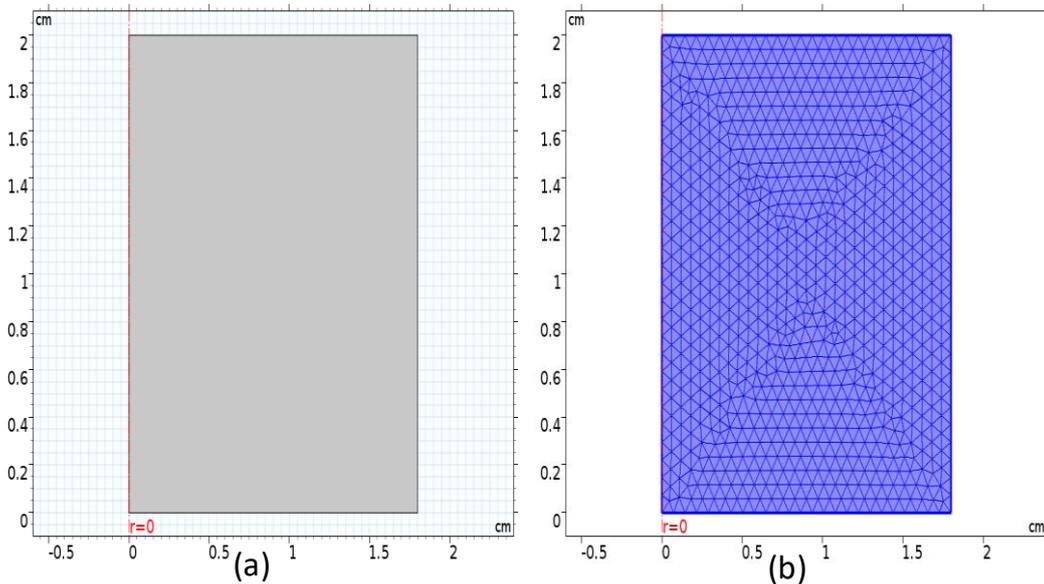


Figure VI-2 : (a) Géométrie de la boue (2D axisymétrique) et (b) son maillage - modèle 1.

Le module "Géométrie déformée" est utilisé avec l'approche Lagrangienne-Eulérienne Arbitraire (ALE) dans le modèle thermo-hydro-mécanique pour tenir compte des changements structuraux résultant du retrait de la boue. La méthode ALE est couramment utilisée pour simuler les domaines de calcul déformables. COMSOL-Multiphysics résout les équations physiques dans un maillage fixe. Cependant, pendant le séchage, la boue a une géométrie évolutive. Les transferts de chaleur et de masse appliqués à la boue doivent être calculés sur un maillage adapté à l'évolution de la géométrie, c'est-à-dire un maillage mobile. Par conséquent, un algorithme de prescription du déplacement du maillage est nécessaire pour modéliser la

déformation de la géométrie et son effet sur les mécanismes de transfert.

Deux fonctions sont insérées dans COMSOL-Multiphysics pour déterminer le retrait axial et radial : (a) *diameter* ( $X/X_0$ ) pour la rétraction radiale et (b) *long* ( $X/X_0$ ) pour la rétraction axiale. Les deux fonctions ont comme paramètre d'entrée la teneur en eau spécifique  $X/X_0$ , et comme paramètre de sortie les valeurs de déplacement dans les directions radiale et axiale, calculées respectivement comme suit :

$$diameter \left( X/X_0 \right) = 1 - \frac{d_{eq}(X/X_0)}{d_0} \quad (\text{VI-13})$$

$$long \left( X/X_0 \right) = 1 - \frac{h_{ave}(X/X_0)}{h_0} \quad (\text{VI-14})$$

Où  $d_{eq}(X/X_0)$  (m) et  $h_{ave}(X/X_0)$  (m) sont le diamètre et la hauteur de la boue à une teneur en eau spécifique  $X/X_0$  (-). L'évolution de ces deux variables est déterminée à partir des mesures expérimentales du retrait, présentées au chapitre IV. Le Tableau VI-1 montre les valeurs de déplacement normal aux limites du domaine de la boue dans les deux directions. Les déplacements non spécifiés signifient qu'ils sont déterminés en fonction des déplacements des autres limites (Figure VI-1).

Tableau VI-1 : Directions et amplitude des déplacements radiaux et axiaux.

Limites #	Déplacement radial (cm)	Déplacement axial (cm)
1	-	0
2	$-\text{diameter}(X_{ave}/X_0) \times d_0/2$	-
3	-	$-\text{long}(X_{ave}/X_0) \times h_0$
4	0	-

## 1.2. Conditions initiales et aux limites

Le Tableau VI-2 montre les conditions initiales et aux limites appliquées au modèle thermo-hydro-mécanique (modèle 1). Les conditions initiales pour les deux variables d'état ( $X$  et  $T$ ) sont basées sur l'hypothèse d'une distribution initiale uniforme de la teneur en eau  $X_0$  et de la température  $T_0$  dans la boue. Pour le bilan massique (Équation (VI-2)), les conditions aux limites sont exprimées en symétrie axiale (limite # 4) et imposent initialement l'absence de flux

massique (flux nul) à travers les limites inférieure et latérale (limites # 1 et 2) (Figure II-1). Une fois que la boue se rétracte et que son diamètre commence à diminuer, une nouvelle surface d'échange est créée et un nouveau flux d'eau est initié sur la surface latérale (limite # 2). Alors qu'à la surface supérieure (limite # 3), le flux d'eau ( $v_{top}$ ) est produit dès que l'évaporation commence. Les flux d'eau de la surface latérale et de ma surface supérieure ( $v_{side}$ ) et ( $v_{top}$ ) dépendent respectivement de leurs surfaces d'échange latérale ( $A_{side}$ ) et supérieure ( $A_{top}$ ). Le bilan énergétique (Équation (VI-11)) attribue une température constante sur les parois du cylindre de boue (limites # 1, 2 et 3) imposée par l'environnement extérieur ( $T_h$ ) et une symétrie axiale (limite # 4).

Tableau VI-2 : Conditions initiales et aux limites du modèle thermo-hydro-mécanique (modèle 1).

Limites #	Coordonnées (r, x) ou temps (t)	Bilan de masse	Bilan d'énergie
-	$t = 0 \text{ s}$	$X = X_0$ $\theta_{G0} = 0$	$T = T_0$
1	$x = 0$	$\nabla(X) = 0; \nabla = \left[ \frac{\partial}{\partial r}, \frac{\partial}{\partial x} \right]$	$T = T_h$
2	$r = R$	$\left\{ \begin{array}{l} \nabla(X) = 0; \nabla = \left[ \frac{\partial}{\partial r}, \frac{\partial}{\partial x} \right]; \text{ if } R = R_0 \\ v_{side} = -\frac{\dot{m} \times V}{A_{side}}; \text{ if } R < R_0 \end{array} \right.$	$T = T_h$
3	$x = h$	$v_{top} = -\frac{\dot{m} \times V}{A_{top}}$	$T = T_h$
4	$r = 0$	$\frac{\partial X}{\partial r} = 0$	$\frac{\partial T}{\partial r} = 0$

### 1.3. Validation du modèle 1

La validation du modèle 1 est basée sur des essais de séchage expérimentaux effectués sur des échantillons de boues A de 30 g. La zone de validité du modèle donne des résultats dans la gamme de conditions d'exploitation indiquée dans le Tableau VI-3. À cette fin, les données cinétiques d'un échantillon de boue A de 30 g séché à une  $HR = 46 \%$ ,  $55 \text{ }^\circ\text{C}$  et  $1000 \text{ mbar}$  sont utilisées. Il convient de noter que les résultats expérimentaux de cet essai n'ont pas été inclus

dans l'ensemble des données expérimentales utilisées pour déterminer les caractéristiques intrinsèques des boues qui constituent les paramètres d'entrée du modèle. La Figure VI-3 montre les courbes de séchage simulées (ligne pointillée) et expérimentales (ligne entière). Les valeurs de la teneur en eau simulée sont extraites des simulations 2D basées sur la moyenne spatiale (fonction moyenne dans COMSOL-Multiphysics) à chaque pas de temps. La courbe de séchage simulée est cohérente avec les valeurs expérimentales. En effet, le pourcentage d'erreur relatif moyen  $E$  (%) s'avère être de 8 % (inférieur à 10 %). Cependant, finalement (après 90 h), les résultats de la simulation sont légèrement surestimés ( $(\frac{X_e}{X_0})_{exp} = 0,02$ ) et ( $(\frac{X_e}{X_0})_{sim} = 0,03$ ).

Tableau VI-3 : Conditions opératoires des essais de séchage expérimentaux.

Paramètres	Expression	Unité	Description
$T_0$	25	°C	Température initiale de la boue
$T_h$	[35-65]	°C	Température de l'extérieur
$X_0$	2,1	-	Teneur en eau initiale
$HR$	46	%	Humidité relative
$P_{abs}$	[200-1000]	mbar	Pression absolue

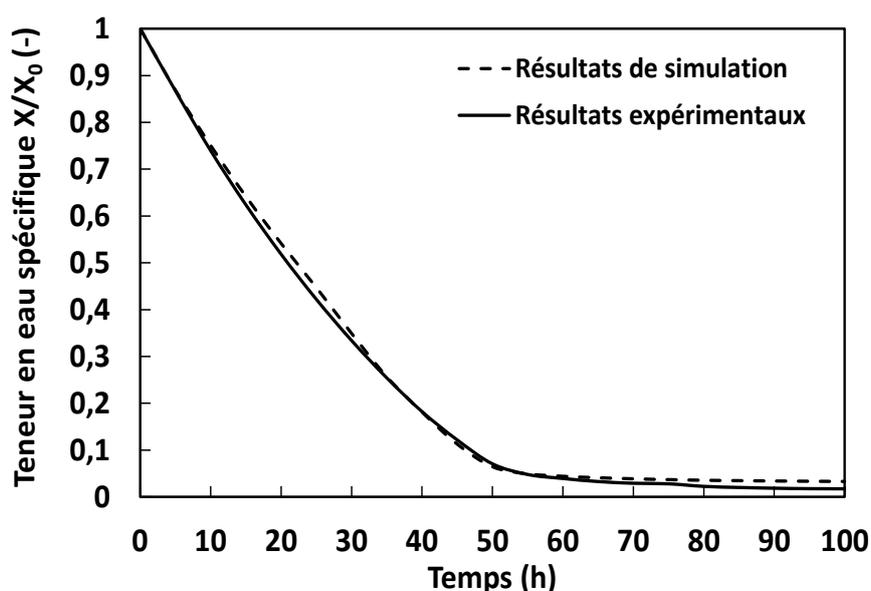


Figure VI-3 : Évolution simulée (ligne pointillée) et expérimentale (ligne continue) de la teneur en eau d'un échantillon de 30 g de boue A séchée à  $HR = 46$  %,  $55$  °C et 1000 mbar.

La stabilité du modèle numérique a été examinée en comparant les résultats de simulation obtenus avec différents types de mailles ayant une forme et une taille différentes. Pour cela, quatre types de maillages ont été testés : triangulaire grossier, triangulaire extrêmement grossier, triangulaire normal et quadrilatère grossier. Comme le montre la Figure VI-4, l'évolution de la teneur en eau spécifique dans le temps n'est pas affectée par le type et la taille de maille, ce qui vérifie le maillage du modèle.

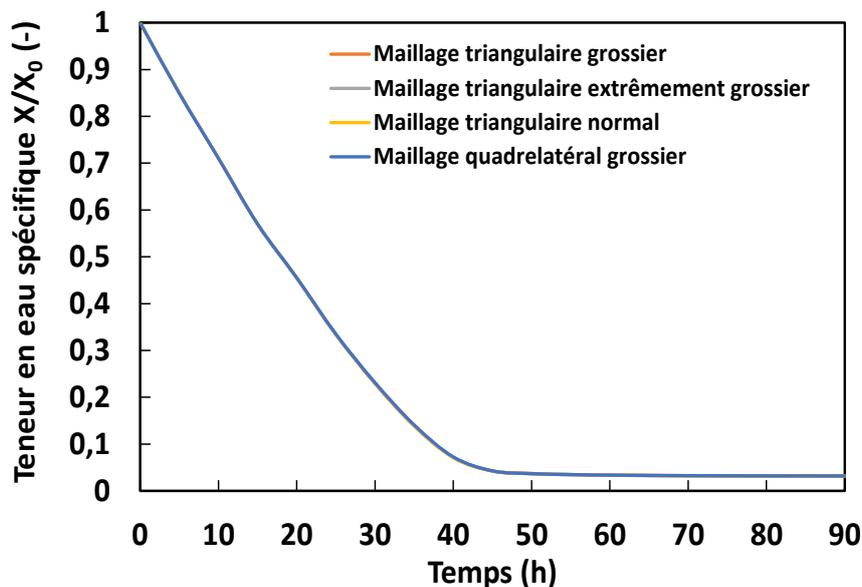


Figure VI-4 : Effet du type de maillage sur les résultats de la simulation à  $HR = 46 \%$ ,  $65 \text{ }^\circ\text{C}$  et 1000 mbar.

#### 1.4. Effet du retrait

Dans ce paragraphe, l'importance de la prise en compte du phénomène de retrait dans la modélisation est démontrée. Dans ce but, le modèle 1 a été adapté pour négliger le retrait. Ainsi, le coefficient de retrait  $\beta$  est fixé à 0 ; le module de déformation géométrique est désactivé et le volume, le rayon et la hauteur sont maintenus constants et égaux à leurs valeurs initiales. Par conséquent, les conditions initiales et aux limites sont les mêmes que celles du modèle 1 avec retrait, sauf qu'il n'y a plus de flux d'évaporation sur la surface latérale (puisque  $d = d_0$ ). De plus, la masse volumique apparente de la boue est calculée en supposant qu'il n'y a pas de variation de volume comme suit :

$$\rho_{app} = \rho_0 \frac{X + 1}{X_0 + 1} \quad (\text{VI-15})$$

Où  $\rho_0 = 1350 \text{ (kg. m}^{-3}\text{)}$  est la masse volumique apparente initiale de la boue.

Figure VI-5 montre les courbes de séchage simulées (lignes pointillées) et expérimentales (ligne entière) acquises sur un échantillon de boue A (30 g) séché à  $HR = 46 \%$ ,  $55 \text{ }^\circ\text{C}$  et 1000 mbar. Les simulations obtenues à partir du modèle 1 avec (ligne bleue en pointillés) et sans (ligne orange en pointillés) retrait sont présentées dans ce graphique. Bien que les courbes simulées montrent des tendances similaires aux données expérimentales, il est évident que le modèle 1 avec retrait donne une meilleure prédiction du profil de la teneur en eau que le modèle 1 sans retrait. En effet, le pourcentage d'erreur relatif entre les données expérimentales et le modèle 1 avec retrait est inférieur à 10 % alors qu'il est supérieur à 30 % pour le modèle 1 sans retrait. Les simulations sans retrait sont décalées par rapport à la courbe expérimentale, ce qui indique une sous-estimation de la vitesse de séchage simulée.

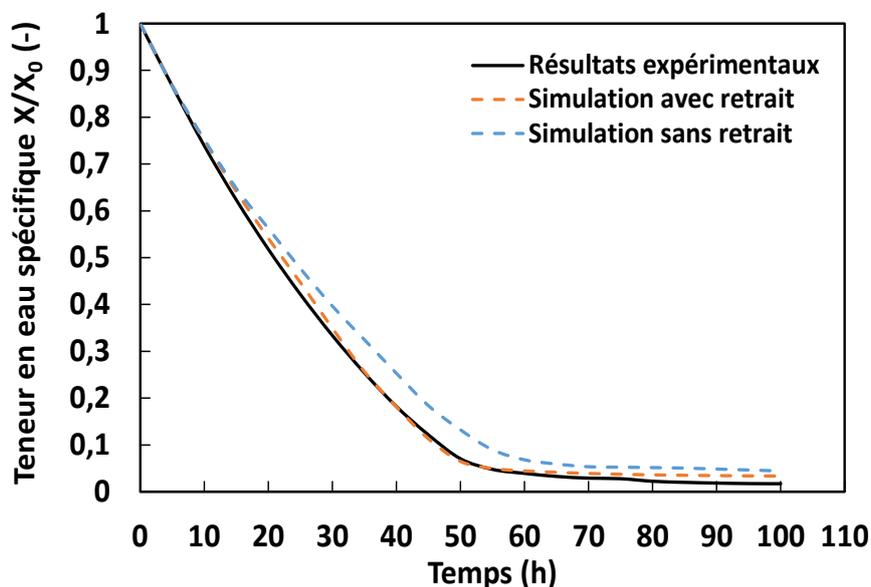


Figure VI-5 : Comparaison de résultats expérimentaux et de simulations (modèle 1) avec et sans retrait de l'évolution de la teneur en eau d'un échantillon de 30 g de boue A séchée à  $HR = 46 \%$ ,  $55 \text{ }^\circ\text{C}$  et 1000 mbar.

Ceci est attribué au fait que le phénomène de retrait de la boue, qui a été observé

expérimentalement, est négligé. La surface d'échange dans le modèle sans retrait est constante et limitée à la surface supérieure ; la surface d'échange entre la boue et l'air ambiant est donc sous-estimée. En effet, lorsque la boue se rétracte, une surface d'échange supplémentaire est créée sur le côté latéral, ce qui favorise l'évaporation. En outre, la réduction du volume des boues renforce le transport d'eau dans le milieu poreux et favorise donc l'évaporation. Le phénomène de retrait dans la modélisation améliore notablement la prévision de l'évolution de la perte d'eau pendant le séchage dans le cas du matériau étudié.

## 2. Mise à l'échelle : modèle de séchage à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2)

L'étape de mise à l'échelle consiste à élargir la géométrie du modèle thermo-hydro-mécanique (modèle 1) à celle de la cuve de la maquette expérimentale. L'objectif est de modéliser le premier essai de séchage (essai 1) de la boue B dans la cuve de la maquette (modèle 2) et de valider les résultats de la simulation avec les résultats expérimentaux.

### 2.1. Géométrie et équations constitutives

Le modèle 2 contient deux autres domaines en plus du domaine de la boue. Ce sont les parois métalliques et le mélange vapeur d'eau/air à l'intérieur de la cuve, initialement placé au-dessus du niveau de remplissage initial de la boue (Figure VI-6a). Le modèle 2 a une géométrie cylindrique avec un diamètre initial de boue de 20 cm, une hauteur initiale de boue de 23,5 cm et une hauteur utile totale de la cuve de 28,5 cm. La cuve cylindrique a une épaisseur de 0,3 cm. Le maillage est centré sur les trois éléments. Les volumes finis triangulaires de Lagrange du deuxième ordre sont sélectionnés par défaut pour créer le maillage de la géométrie 2D axisymétrique des trois éléments dans le modèle 2 comme le montre la Figure VI-6b.

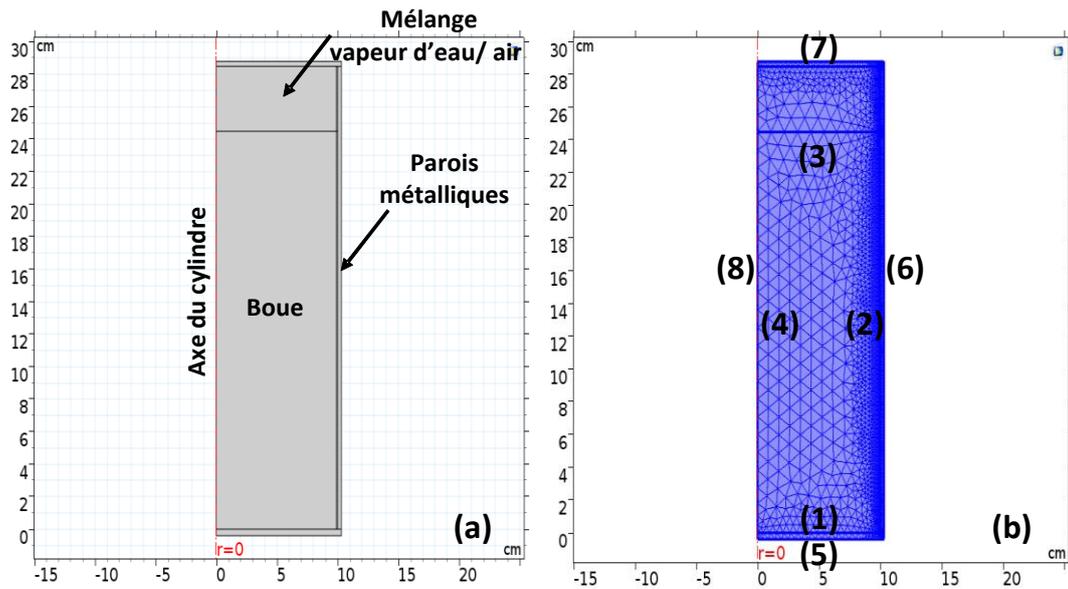


Figure VI-6 : (a) Géométrie de la boue (2D axisymétrique) et (b) son maillage - modèle 2.

Le même système d'équations que celui du modèle 1 (paragraphe 1.1 est appliqué au domaine de la boue, dans le modèle de séchage à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2). Les paramètres intrinsèques de la boue B, présentés au chapitre IV, sont insérés dans le modèle 2 en tant que paramètres d'entrée, comme indiqué dans le Tableau VI-4. Le terme de cinétique d'évaporation ( $K_{vap}$ ) de la boue B séchant dans la cuve est déduit du chapitre V. La masse volumique apparente de la boue B, présentée au chapitre IV, est tabulée et insérée dans le modèle 2.

Tableau VI-4 : Paramètres d'entrée du modèle de séchage de la boue à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2).

Paramètre	Expression	Unité
$D_{app}$	$\begin{cases} 6,51 \times 10^{-8} \times \exp\left(\frac{-26546,6}{R_{gas}T}\right) & \text{if } 210 < X < 380 \% \\ 10^{-8} \times \left(8888 - 8237\left(\frac{X}{2,1}\right) + 31220 \times \exp\left(-30,8\left(\frac{X}{2,1}\right)\right)\right) \times \exp\left(\frac{-26546,6}{R_{gas}T}\right) & \text{if } X < 210 \% \end{cases}$	(m <sup>2</sup> . s <sup>-1</sup> )
$\beta$	$\begin{cases} 13,3 & \text{if } 0,06 < \frac{X}{X_0} \leq 1 \\ 0 & \text{if } \frac{X}{X_0} \leq 0,06 \end{cases} \quad (X_0 = 380 \%)$	(-)
$a_w$	$1 - \exp(-0,282X^{1/1,823})$	(-)
$\theta_s$	$\frac{\theta_{s0}}{V} = \begin{cases} \frac{\theta_{s0}}{0,93 \frac{X}{X_0} + 0,07} ; & 0,06 < \frac{X}{X_0} \leq 1 \\ \frac{\theta_{s0}}{0,12} ; & \frac{X}{X_0} \leq 0,06 \end{cases} \quad (X_0 = 380 \%)$	(-)
$c_p$	$-2,66\exp(-0,81X) + 3,46$	(J. mol <sup>-1</sup> . K <sup>-1</sup> )
$K_{eff}$	$0,98 \frac{X}{2,1} + 1,62$	(W. m <sup>-1</sup> . K <sup>-1</sup> )

Le transfert de masse n'est pris en compte que dans le domaine de la boue (Équation (VI-2)) et la déformation de la géométrie est prise en compte dans les domaines relatifs à la boue et au mélange gazeux (paragraphe 1.1.3). Les rétractions radiale et axiale sont exprimées par les fonctions diameter ( $X/X_0$ ) et long ( $X/X_0$ ), respectivement dans le module "Géométrie déformée". Ces fonctions sont basées sur les données expérimentales de la boue B présentées au chapitre IV.

Le transfert de chaleur est pris en compte sur tous les domaines de la géométrie (boues, parois métalliques et mélange de gaz). L'Équation (VI-11) pour le transfert de chaleur est toujours appliquée au domaine associé à la boue. En ce qui concerne les parois métalliques et le mélange gazeux, l'équation de la loi de Fourier de la conduction thermique sans source/puits de chaleur est appliquée, comme suit :

$$\rho_i c_{pi} \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (K_i \nabla T) \quad (\text{VI-16})$$

Où  $\rho_i$  (kg. m<sup>-3</sup>),  $c_{pi}$  (J. K<sup>-1</sup>. g<sup>-1</sup>) et  $K_i$  (W. m<sup>-1</sup>. K<sup>-1</sup>) sont respectivement la masse volumique, la capacité calorifique et la conductivité thermique de l'élément 'i'. 'i' peut se référer aux parois métalliques ou au mélange de gaz. Les propriétés thermiques des parois métalliques et du mélange gazeux utilisées dans le modèle 2, extraites de la littérature, sont énumérées dans le Tableau VI-5 :

Tableau VI-5 : Propriétés thermo-physiques des parois métalliques et du ciel gazeux.

Propriétés thermo-physiques	Parois métalliques [6]	Ciel gazeux [7]
$\rho_i$ (kg. m <sup>-3</sup> )	7960	1
$c_{pi}$ (J. K <sup>-1</sup> . g <sup>-1</sup> )	0,5	1,1
$K_i$ (W. m <sup>-1</sup> . K <sup>-1</sup> )	16,3	0,03

## 2.2. Conditions initiales et aux limites

Le Tableau VI-6 montre les conditions initiales utilisées dans le modèle 2. Les conditions initiales dans la boue, pour les deux variables d'état, sont basées sur l'hypothèse d'une distribution uniforme de l'eau  $X_0$  et d'une température initiale uniforme  $T_0$ . La fraction initiale du volume de gaz est supposée être nulle dans tout le volume de la boue (milieu poreux saturé). La température initiale des parois métalliques et du mélange gazeux est également supposée être égale à  $T_0$ .

Tableau VI-6 : Conditions initiales du modèle de séchage de la boue à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2)..

Elément	Bilan de masse	Bilan d'énergie
Boue	$X = X_0$ $\theta_{G0} = 0$	$T = T_0$
Ciel gazeux	-	$T = T_0$
Parois métalliques	-	$T = T_0$

D'autre part, le Tableau VI-7 indique les conditions aux limites appliquées sur le modèle 2. En ce qui concerne l'élément boue (limites # 1, 2, 3 et 4) (Figure VI-6b), les mêmes conditions aux limites de transfert de masse sont appliquées que dans le modèle 1. En revanche, les conditions aux limites relatives au transfert de chaleur sont appliquées sur la surface extérieure

des parois métalliques (limites # 5, 6, 7 et 8). Pour les parois (# 5, 6 et 7), la température est prise égale à la température chaude externe ( $T_{wall} = T_h$ ). La condition de symétrie axiale est appliquée sur tout l'axe cylindrique des trois éléments (limites # 8).

Tableau VI-7 : Conditions aux limites du modèle de séchage de la boue à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2).

Limites #	Elément	Coordonnées (r, x)	Bilan de matière	Bilan d'énergie
1	Boue	$x = 0,3$ cm (Partie interne du fond de la cuve)	$\nabla(X) = 0; \nabla = \left[ \frac{\partial}{\partial r}, \frac{\partial}{\partial x} \right]$	-
2	Boue	$r = R$	$\begin{cases} \nabla(X) = 0; \nabla = \left[ \frac{\partial}{\partial r}, \frac{\partial}{\partial x} \right]; & \text{if } R = R_0 \\ v_{side} = -\frac{\dot{m} \times V}{A_{side}}; & \text{if } R < R_0 \end{cases}$	-
3	Boue	$x = h$	$v_{top} = -\frac{\dot{m} \times V}{A_{top}}$	-
4	Boue	$r = 0$	$\frac{\partial X}{\partial r} = 0$	-
5	Parois	$x = 0$	-	$T = T_h$
6	Parois	$r = 10,3$ cm (Partie externe de la paroi latérale)	-	$T = T_h$
7	Parois	$x = 28,8$ (Partie externe de la paroi du couvercle)	-	$T = T_h$
8	Boue, Parois et ciel gazeux	$r = 0$	-	$\frac{\partial T}{\partial r} = 0$

### 2.3. Validation du modèle 2

Les valeurs de la teneur en eau simulée sont extraites des simulations 2D basées sur la moyenne spatiale (fonction moyenne dans COMSOL-Multiphysics) à chaque pas de temps. La courbe de séchage simulée est cohérente avec les valeurs expérimentales, comme le montre la Figure VI-7. En effet, on constate que le *RMSE* est inférieur à 0,08 (kg eau. kg<sup>-1</sup> solide). Cependant, les résultats simulés sont légèrement différents des résultats expérimentaux, ce qui indique une sous-estimation de la vitesse de séchage dans le modèle 2. Cette sous-estimation pourrait être

due à l'hypothèse d'une humidité relative constante dans le ciel gazeux à l'intérieur de la cuve en contact avec la boue. En effet, l'humidité relative qui était supposée constante tout au long des essais de séchage 1 et 3, diminue légèrement avec la réduction de l'eau comme le montre le chapitre V. La diminution de l'humidité relative augmente le gradient de pression entre la surface de la boue et le milieu environnant, ce qui favorise la vitesse de séchage et accélère donc le processus de séchage.

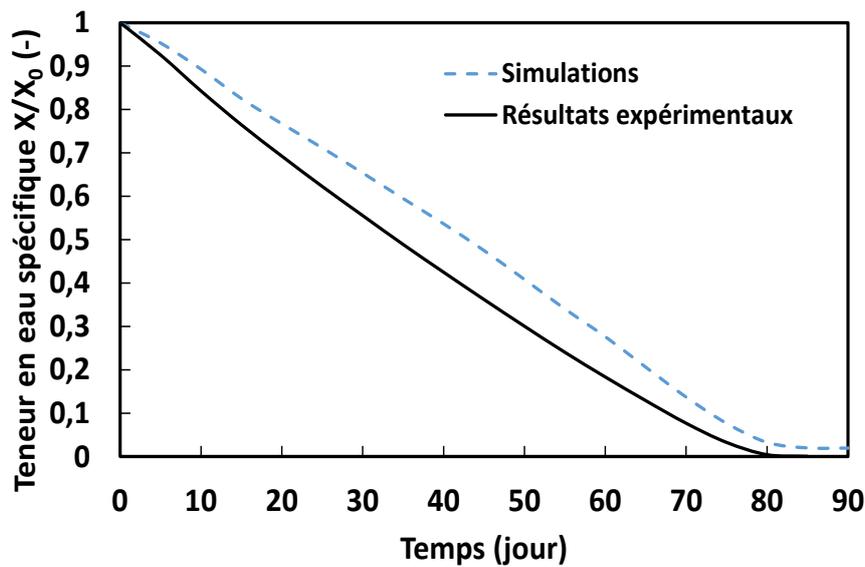


Figure VI-7 : Résultats expérimentaux et simulés de l'évolution de la teneur en eau spécifique pendant le séchage de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale.

La concordance entre les résultats expérimentaux et les simulations est aussi confirmée dans la Figure VI-8. La différence entre les teneurs en eau spécifiques simulées et expérimentales est toujours inférieure à 10 %. La différence est à son minimum au début du séchage (à des valeurs élevées de la teneur en eau spécifique). Elle augmente jusqu'à un maximum de 10 %, puis diminue à nouveau jusqu'à ce qu'elle devienne inférieure à 1 % à la fin du séchage (pour les faibles teneurs en eau spécifiques).

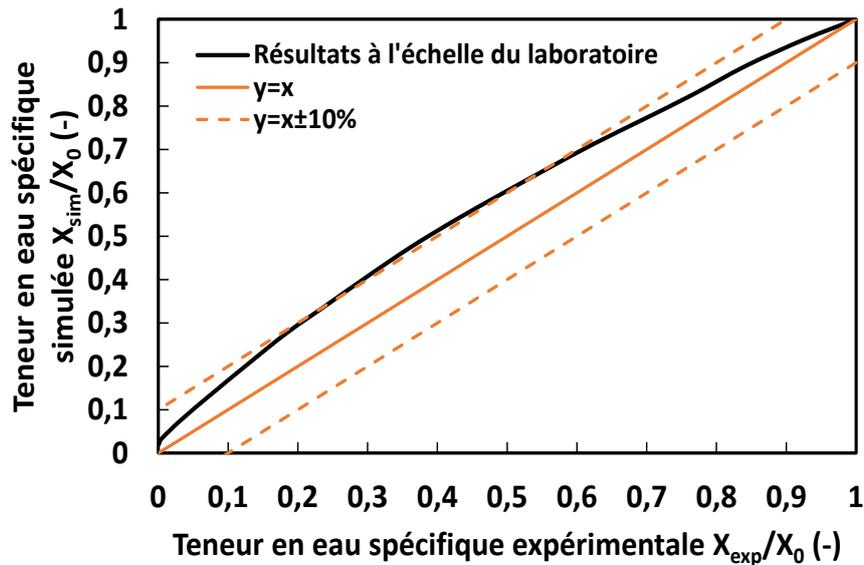


Figure VI-8 : Évolution de la teneur en eau spécifique simulée en fonction de la teneur en eau spécifique expérimentale.

D'autre part, les résultats de la température simulée sont extraits aux mêmes coordonnées des thermocouples insérés dans la cuve, à chaque pas de temps. La Figure VI-9 montre l'évolution expérimentale de la température à l'intérieur de la boue enregistrée par les thermocouples (TC # 4, 8, 9 et 13) et l'évolution simulée au même endroit des thermocouples désignés. Les résultats de la température simulée sont cohérents avec les résultats acquis expérimentalement avec un  $R^2$  égal à 97 %. Les résultats simulés et expérimentaux montrent qu'après 2 jours, la période de préchauffage est terminée. En effet, la température augmente fortement pendant les 2 premiers jours, passant de la température initiale (20 °C) à 60 °C pour les résultats simulés et à 58 °C pour l'évolution expérimentale. Cette légère différence de température pourrait être due à une quantité insuffisante de chaleur fournie par l'étuve, ce qui est négligé dans le modèle numérique. Par la suite, la température simulée et expérimentale augmente lentement pendant le séchage jusqu'à ce qu'elle atteigne 62 °C à la fin du séchage après 84 jours.

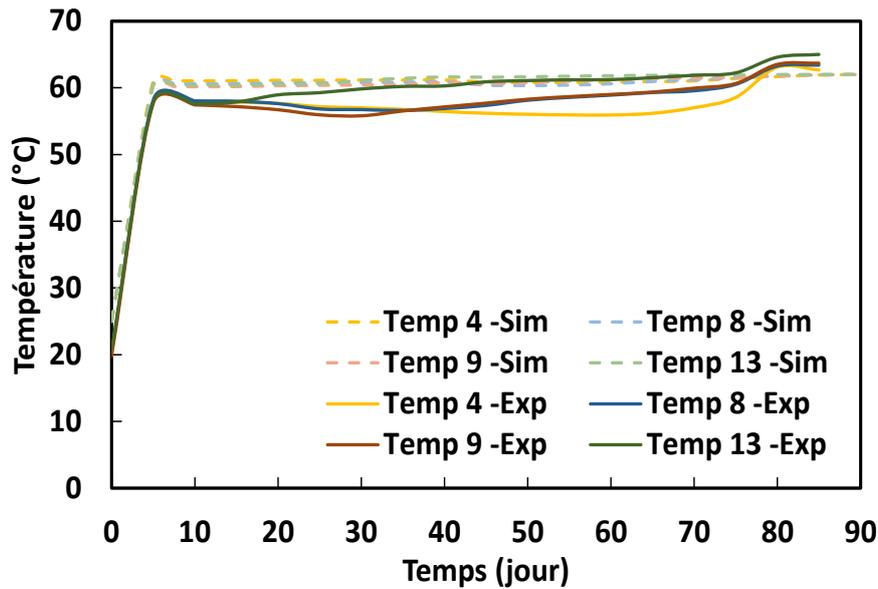


Figure VI-9 : Evolution de la température expérimentale et simulée au cours du séchage de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale – essai 1.

### 3. Conclusions

Afin de simuler le séchage de la boue, deux modèles sont créés et validés : le modèle 1 qui simule le séchage d'échantillons de boues A de 30 g, et le modèle 2 qui simule le séchage de boues B à l'échelle de la maquette expérimentale. Les deux modèles sont basés sur des équations de transfert de chaleur et de masse, calculées en géométrie déformable qui tient compte du phénomène de retrait. Le modèle 1 a permis de prédire avec précision ce qui se passe réellement pendant le séchage par rapport aux résultats expérimentaux. Afin de démontrer l'importance de la prise en compte du phénomène de retrait, le modèle 1 a été adapté pour ne pas prendre en compte le retrait. La simulation sans prise en compte du retrait montre son incapacité à simuler précisément le séchage des boues : il y a une sous-estimation de la vitesse de séchage. Il a été constaté que le modèle 1 avec retrait donne une meilleure prédiction du profil de la teneur en eau que le modèle 1 sans retrait. Les simulations du modèle 2, montrent une cohérence avec les résultats expérimentaux pour les profils de température et de teneur en eau globale. Dans le chapitre suivant, les résultats des modèles de séchage seront détaillés et interprétés, pendant le séchage des boues dans différentes conditions opératoires.

## Références

- [1] Kohout, M.; Collier, A. P.; Štěpánek, F. Mathematical Modelling of Solvent Drying from a Static Particle Bed. *Chemical Engineering Science*, **2006**, *61* (11), 3674–3685. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.12.036>.
- [2] Thuwapanichayanan, R.; Prachayawarakorn, S.; Soponronnarit, S. Modeling of Diffusion with Shrinkage and Quality Investigation of Banana Foam Mat Drying. *Drying Technology*, **2008**, *26* (11), 1326–1333. <https://doi.org/10.1080/07373930802330979>.
- [3] Murru, M.; Giorgio, G.; Montomoli, S.; Ricard, F.; Stepanek, F. Model-Based Scale-up of Vacuum Contact Drying of Pharmaceutical Compounds. *Chemical Engineering Science*, **2011**, *66* (21), 5045–5054. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.06.059>.
- [4] C. L. Yaws. *The Yaws Handbook of Vapor Pressure : Antoine Coefficients*, Gulf Prof. Pub., 336p.; Elsevier, 2015. <https://doi.org/10.1016/C2014-0-03590-3>.
- [5] Youcef-Ali, S.; Moumami, N.; Desmons, J. Y.; Abene, A.; Messaoudi, H.; Le Ray, M. Numerical and Experimental Study of Dryer in Forced Convection. *Int. J. Energy Res.*, **2001**, *25* (6), 537–553. <https://doi.org/10.1002/er.707>.
- [6] Choong, K. *Thermophysical Properties of Stainless Steels*; National Technical Information Service, 1975.
- [7] Boukhriss, M.; Zhani, K.; Ghribi, R. Study of Thermophysical Properties of a Solar Desalination System Using Solar Energy. *Desalination and Water Treatment*, **2013**, *51* (4–6), 1290–1295. <https://doi.org/10.1080/19443994.2012.714925>.

## VII. Modélisation numérique : résultats et discussion

Dans ce chapitre, les résultats de simulation des modèles à petite échelle (modèle 1) et à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2) sont examinés et interprétés. L'effet des conditions opératoires sur le temps de séchage, basé sur le modèle 1, est présenté. Une discussion générale sur les hypothèses retenues dans la modélisation numérique est élaborée dans ce chapitre, afin de démontrer le comportement homogène des boues pendant le séchage. Ensuite, les résultats d'une étude paramétrique et d'une étude de sensibilité menées sur le modèle 2 sont présentés. Enfin, une simulation du séchage des boues à l'échelle du fût industriel est également réalisée.

### 1. Modèle à petite échelle (modèle 1)

Les résultats de simulation de la température et de la distribution de la teneur en eau spécifique, pendant le séchage de 30 g de boue A ( $X_0 = 210\%$ ), sont présentés dans cette partie en considérant le modèle 1. Plusieurs simulations sont ensuite réalisées, dans différentes conditions de température et de pression absolue, pour montrer leur effet sur la cinétique de séchage.

#### 1.1. Évolutions de la température et de la teneur en eau dans le modèle 1 avec et sans retrait

Figure VII-1et Figure VII-3 montrent les résultats de simulation de la distribution de la température et de la teneur en eau spécifique dans l'échantillon de boue A (30 g) pendant le séchage, en considérant le modèle 1 avec retrait. Les déplacements radiaux et axiaux des limites géométriques simulés par le modèle 1 décrivent le retrait de l'échantillon. Ces déplacements ont été paramétrés à partir de mesures de retrait effectuées expérimentalement sur des échantillons de boues séchés (étude micro-tomographique - chapitre IV).

Au début, la température est uniforme dans tout l'échantillon et égale à 20 °C (Figure VII-1a). La température est imposée à la surface de la boue (parois du pot et surface) et pénètre dans l'échantillon dès le début du séchage. Pendant la première heure (Figure VII-1b), la

température augmente rapidement pour atteindre 64,4 °C à cœur et 65 °C en périphérie. Il est notable que la température a augmenté sans impliquer une variation significative de la teneur en eau et du volume spécifique. Comme le montre la courbe de la vitesse de séchage (Figure VII-2), la période de chauffage de l'échantillon se termine après la première heure de séchage, ce qui entraîne une augmentation de la vitesse de séchage de la boue (partie 0). Ces simulations montrent également que le cœur de l'échantillon est la zone la plus froide. Au-delà d'une heure, la température de la boue devient constante et presque égale à la température de l'air chaud ambiant (65 °C) (Figure VII-1c). La boue rétrécit comme prévu avec la diminution de la teneur en eau pendant le séchage jusqu'à atteindre un rapport volumique final  $V/V_0 = 24 \%$ , à 65 °C.

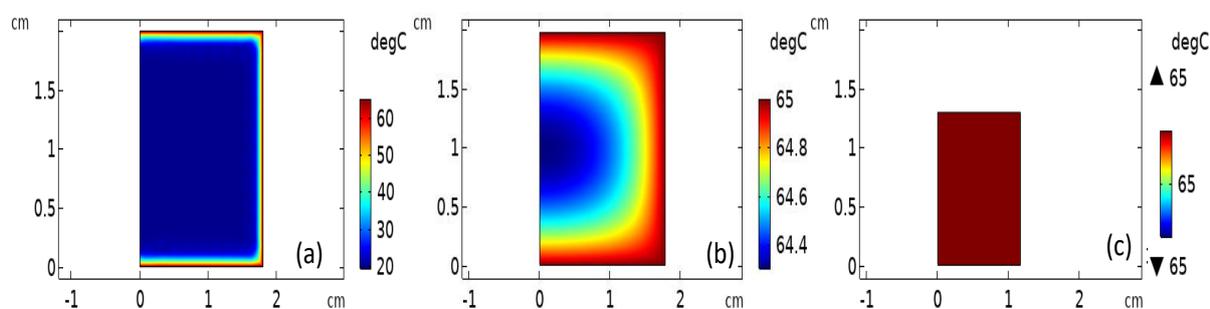


Figure VII-1 : Simulation de la distribution de température dans un échantillon de boue A (30 g), en considérant le modèle 1 avec retrait, à (a)  $t = 0$  h; (b)  $t = 1$  h et (c)  $t = 60$  h ( $HR = 46 \%$ , 65 °C et pression atmosphérique).

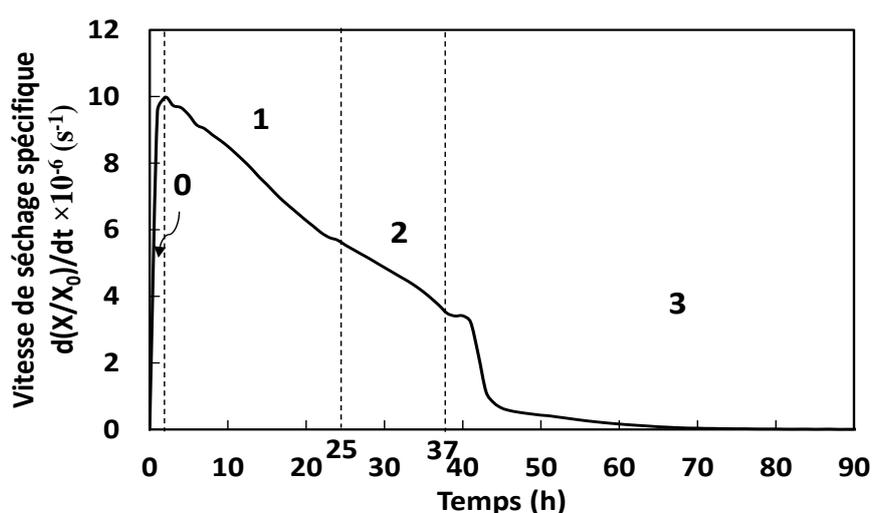


Figure VII-2 : Évolution de la vitesse de séchage spécifique expérimentale d'un échantillon de 30 g de boue A au cours du temps déterminée à  $HR = 46 \%$ , 65 °C et pression atmosphérique.

La teneur en eau spécifique est initialement uniforme dans toute la géométrie de l'échantillon (Figure VII-3a). Après une heure de séchage, lorsque la température de la boue a presque atteint la température de la source chaude et que la variation du volume de la boue est encore faible ( $V/V_0 = 99 \%$ ), la teneur en eau spécifique diminue progressivement à une valeur comprise entre 0,91 en surface et 0,97 en bas (Figure VII-3b). Des strates horizontales se forment dans la boue, ayant des teneurs en eau spécifiques différentes. Ce gradient de teneur en eau spécifique est dû à la présence de la seule surface d'échange (surface supérieure), où l'eau libre migre de tout le volume de la boue vers la surface pour s'évaporer [1]. La faible teneur en eau spécifique dans la strate supérieure est due à son contact avec le mélange gazeux qui a une teneur en eau spécifique nettement plus faible, ce qui entraîne une vitesse de séchage plus élevée aux limites qu'à l'intérieur de l'échantillon [2].

À mesure que le séchage progresse, la teneur en eau spécifique diminue progressivement dans l'échantillon et la boue se rétracte, uniquement dans sa direction axiale. Cette période correspond à la partie 1 de la courbe de vitesse de séchage (Figure VII-2), période durant laquelle la vitesse de séchage et la teneur en eau diminuent simultanément (cf. chapitre II - Figure II-6). Après 25 h, le rayon commence à se réduire et entraîne la création d'une nouvelle surface d'échange (surface latérale) entre la boue et l'environnement (Figure VII-3c). Cela contribue également à la création de zones concentriques plus ou moins sèches (Figure VII-3c et d). La réduction de la teneur en eau spécifique s'accompagne d'un retrait en volume, de sorte que le rapport volumique est égal à 44 % pour une teneur en eau spécifique globale  $X/X_0 = 0,33$  après 25 h. La création de la nouvelle surface d'échange entraîne une modification de la pente de la courbe représentant la vitesse de séchage, la forte pente de la partie 1 s'adoucisant en partie 2. L'atténuation de la diminution de la vitesse de séchage reflète l'augmentation du taux d'évaporation grâce à la surface d'échange supplémentaire (surface

latérale) [3, 4]. La teneur en eau spécifique et le volume de la boue continuent à diminuer simultanément pendant une période pouvant aller jusqu'à 37 heures.

Après 37 heures, le volume de la boue ne diminue plus, bien que la teneur en eau continue à diminuer. Cela confirme que la limite de retrait est atteinte : les particules solides sont désormais très serrées les unes contre les autres et ne peuvent plus se rapprocher [5-7]. En conséquence, la vitesse de séchage diminue fortement, exprimée par une nouvelle pente plus raide (partie 3). Ceci est dû à la disparition de l'eau libre et à la présence uniquement de l'eau liée, la plus difficile à éliminer [8]. Le rapport de volume de la boue atteint une valeur minimale de 24 % pour une valeur globale critique de la teneur spécifique en eau  $X_{cr}/X_0$  égale à 0,11 (Figure VII-3d). Le rapport volumique final simulé est légèrement supérieur à la valeur expérimentale moyenne (22 %) avec une différence de 2 %. Cette différence s'explique par le méthode de mesure du rapport volumique. En effet, la valeur expérimentale est déterminée sur la base des valeurs moyennes des résultats de la méthode de compensation du volume et de l'étude micro-tomographiques (Figure IV-5), alors que l'évolution du volume dans le modèle numérique est déterminée uniquement sur la base de l'étude micro-tomographique qui a des valeurs légèrement supérieures à celles déterminées par la méthode de compensation du volume. Cependant, les valeurs obtenues restent toujours dans la barre d'erreur des valeurs expérimentales. La teneur en eau de la boue continue ensuite à diminuer à volume constant jusqu'à ce qu'elle atteigne la teneur en eau spécifique d'équilibre  $X_e/X_0 = 0,03$  à la fin du séchage (Figure VII-3e).

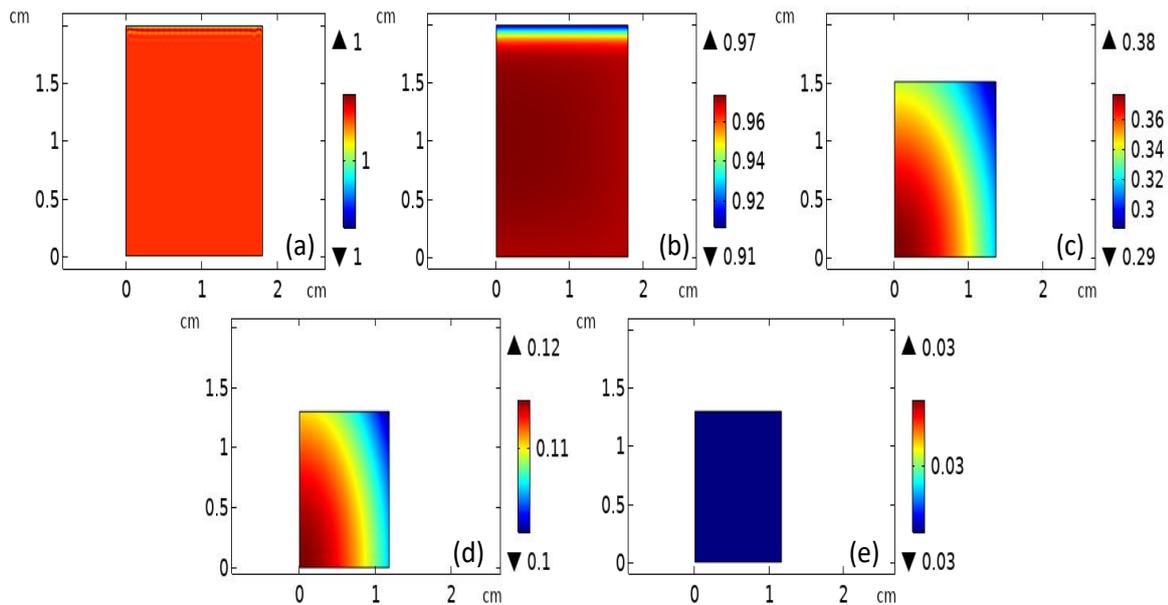


Figure VII-3 : Simulation de la distribution de la teneur en eau spécifique dans un échantillon de boue A (30 g), en considérant le modèle 1 avec retrait, à (a)  $t = 0$  h; (b)  $t = 1$  h; (c)  $t = 25$  h; (d)  $t = 37$  h et (e)  $t = 60$  h ( $HR = 46\%$ ,  $65\text{ }^{\circ}\text{C}$  et pression atmosphérique).

D'autre part, les Figure VII-4 montrent les profils de teneur en eau spécifiques simulés dans un échantillon de 30 g de boue A pendant le séchage, en considérant le modèle 1 sans retrait. L'objectif de la présentation de ces simulations est de confirmer l'importance de la prise en compte du phénomène de retrait dans le modèle de séchage. La teneur en eau spécifique est d'abord imposée de manière uniforme dans toute la géométrie de l'échantillon et est égale à 1 (Figure VII-4a). Après 25 heures de séchage, la teneur en eau spécifique est réduite à 0,36 en bas et à 0,34 en surface (Figure VII-4b). La teneur en eau spécifique globale de l'échantillon de boue après 25 heures est de 0,35, supérieure à celle simulée par le modèle 1 avec retrait au même temps ( $X/X_0 = 0,33$ ). À mesure que le séchage progresse, la teneur en eau diminue progressivement dans l'échantillon, créant des couches superposées avec des teneurs en eau croissantes vers le bas de la boue et toujours sans aucune déformation géométrique du fait de la non prise en compte du phénomène de retrait dans le modèle (Figure VII-4b et c). Le profil horizontal est dû au flux d'évaporation se produisant uniquement à la surface supérieure, l'eau libre migrant du fond pour s'évaporer à la surface supérieure. La teneur en eau spécifique

continue à diminuer jusqu'à atteindre l'équilibre  $X_{eq}/X_0 = 0,03$  après 65 heures (Figure VII-4d). Les résultats des simulations sans retrait montrent que le temps de séchage nécessaire est de 65 heures (Figure VI-5). Dans le cas où le retrait est pris en compte, le temps de séchage nécessaire est de 60 heures et est identique au temps de séchage expérimental. En comparant les résultats simulés avec et sans retrait, il est évident que les simulations avec retrait donnent une meilleure prédiction de l'évolution de l'eau spécifique expérimentale (Figure VI-5). En négligeant les phénomènes de retrait dans le modèle numérique, le volume de la boue reste constant pendant le séchage, le rayon reste égal à sa valeur initiale, de sorte que la surface d'échange est limitée à la surface supérieure. Par conséquent, la surface d'échange entre la boue et le milieu environnant est sous-estimée, ce qui ralentit la cinétique du séchage simulé. De plus, en raison du retrait, l'humidité a une distance plus courte à parcourir à travers la boue et atteint donc la surface plus rapidement, ce qui améliore la diffusion de l'eau, augmente la vitesse de séchage et réduit le temps de séchage [9]. Par conséquent, la répartition de l'eau à l'intérieur de l'échantillon obtenue par simulation s'écarte de celle expérimentalement observée dans le temps en négligeant le retrait.

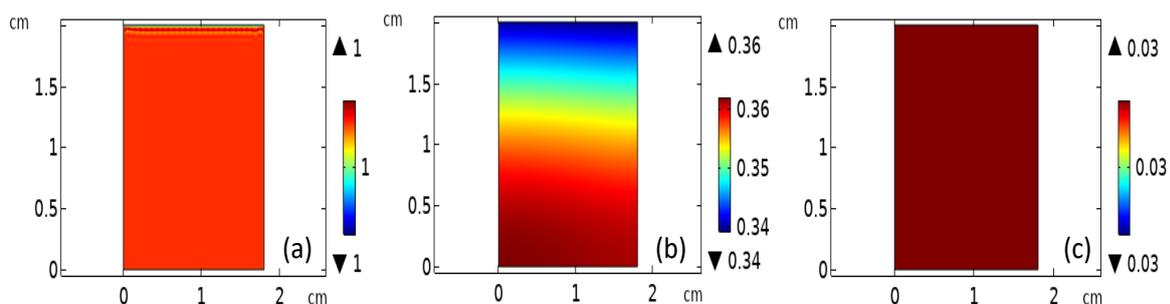


Figure VII-4 : Simulation de la distribution de la teneur en eau spécifique dans un échantillon de boue A, en considérant le modèle 1 sans retrait à (a)  $t = 0$  h; (b)  $t = 20$  h et (c)  $t = 65$  h ( $HR = 46$  %,  $65$  °C et pression atmosphérique).

## 1.2. Effet de la température et de la pression sur le temps de séchage requis

Les Figure VII-5 et Figure VII-6 montrent respectivement les courbes de séchage simulées (avec retrait) et expérimentales acquises sur des échantillons de boue A (30 g) séchés à différentes températures (35, 45, 55 et 65 °C) et pressions absolues (200, 350 et 1000 mbar).

Les valeurs numériques de la teneur en eau spécifique  $X_{sim}/X_0$  sont extraites des simulations 2D basées sur la moyenne spatiale (fonction moyenne dans COMSOL-multiphysique) à chaque pas de temps. Les résultats numériques avec le retrait sont en bon accord avec les résultats expérimentaux, avec un  $R^2$  global supérieur à 99,6 % et une  $RMSE$  inférieure à 0,04. En comparant les résultats expérimentaux et numériques à différentes températures et pressions, il est clair qu'ils sont concordants et que le léger décalage a peu d'impact sur la dynamique du séchage.

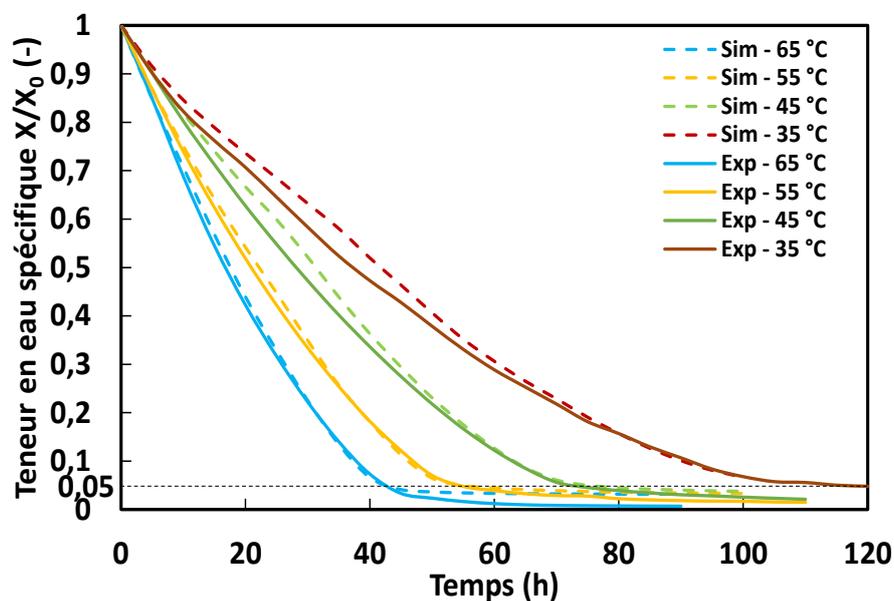


Figure VII-5 : Évolutions simulée et expérimentale de la teneur en eau spécifique au cours du séchage d'un échantillon de boue A de 30 g à  $HR = 46$  %, pression atmosphérique et à différentes températures (35, 45, 55 et 65 °C).

Comme le montre la Figure VII-5, les résultats des expériences et des simulations confirment l'effet d'une augmentation de la température sur l'accélération du séchage, ce qui concorde avec d'autres études sur le séchage de différents matériaux [10-12]. En effet, le taux d'évaporation est directement proportionnel au gradient de pression de vapeur entre la surface de la boue et l'environnement extérieur (chapitre VI). Comme la pression de vapeur augmente avec la température [13], la vitesse de séchage dans la boue est donc plus grande à haute température. De plus, le coefficient de diffusion de l'eau apparent est directement proportionnel à la

température, ce qui favorise le transfert d'eau à haute température [4, 10, 14].

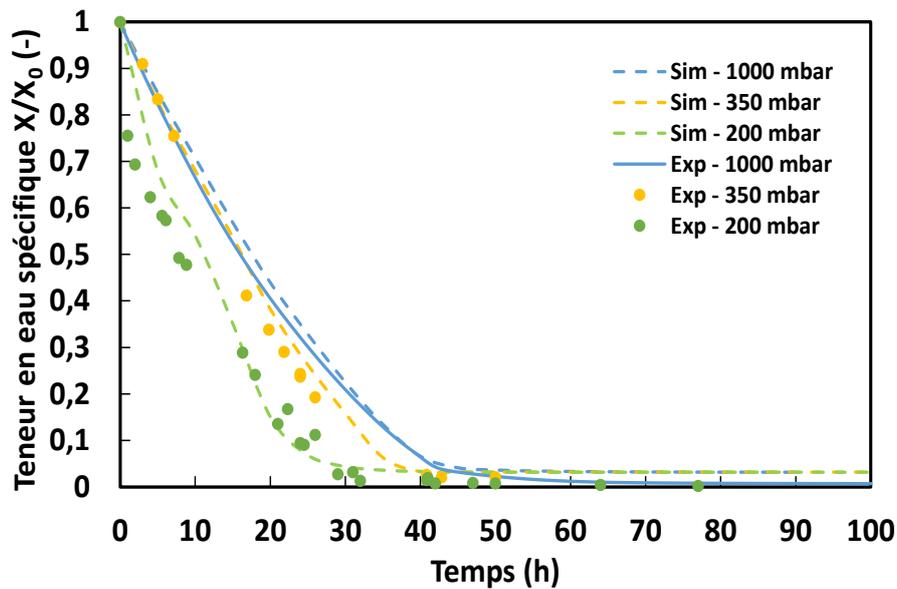


Figure VII-6 : Évolutions simulée et expérimentale de la teneur en eau spécifique au cours du séchage d'un échantillon de boue A de 30 g à  $HR = 46 \%$ ,  $65 \text{ }^\circ\text{C}$  et à différentes pressions absolues (200, 350 et 1000 mbar).

Des expériences et des simulations à 1000 mbar et  $HR = 46 \%$  le confirment en montrant que les temps de séchage nécessaires pour atteindre  $X/X_0 = 0,05$  sont de 42, 55, 74 et 115 h à 65, 55, 45 et  $35 \text{ }^\circ\text{C}$ , respectivement. Le séchage à  $65 \text{ }^\circ\text{C}$  donne alors un gain de 63 % en temps pour atteindre l'état d'équilibre par rapport au séchage à  $35 \text{ }^\circ\text{C}$  pour un échantillon de 30 g de boue A.

D'autre part, des résultats expérimentaux et numériques confirment l'effet de la faible pression absolue sur l'accélération du séchage (Figure VII-6), comme le confirment plusieurs autres travaux [15-17]. Comme le taux d'évaporation est directement proportionnel au gradient de pression de vapeur, l'évaporation dans la boue est plus élevée à faible pression de vapeur (gradient de pression de vapeur élevé) et la vitesse de séchage est plus rapide [18]. Des expériences et des simulations à  $65 \text{ }^\circ\text{C}$  et  $HR = 46 \%$  montrent que les temps de séchage nécessaires pour atteindre  $X/X_0 = 0,05$  sont de 42, 37 et 28 h à 1000, 350 et 200 mbar,

respectivement. Le séchage à 200 mbar diminue de 50 % le temps nécessaire pour atteindre l'état d'équilibre par rapport au séchage à 1000 mbar d'un échantillon de boue A de 30 g.

## 2. Modèle à l'échelle de la maquette expérimentale (modèle 2)

Les résultats obtenus lors de la simulation du séchage de la boue B ( $X_0 = 380\%$ ) avec le modèle 2 sont présentés dans cette partie. Les hypothèses retenues dans les modèles numériques sont également discutées, afin de démontrer le comportement homogène des boues pendant le séchage à petite échelle et à l'échelle de la maquette du laboratoire. Une étude paramétrique est réalisée sur les paramètres opératoires et les dimensions de la maquette du laboratoire. Une étude de sensibilité est également réalisée sur différentes caractéristiques des boues. L'évolution de la teneur en eau spécifique simulée de la boue pendant le séchage à l'échelle du fût industriel est également présentée.

### 2.1. Évolution de la température et de la teneur en eau dans le modèle 2

Les Figure VII-7 et Figure VII-8 montrent respectivement la température simulée et la distribution de la teneur en eau spécifique de la boue B pendant le séchage à l'échelle de la maquette du laboratoire, en considérant le modèle 2. Elles montrent également les déplacements radiaux et axiaux des limites géométriques simulés par le modèle numérique décrivant le retrait de l'échantillon.

Au début, la température est égale à 20 °C et est uniforme la géométrie de la boue. Une température extérieure de 62 °C est imposée sur les parois métalliques de la cuve. Elle pénètre dans le mélange gazeux à l'intérieur de la cuve ainsi que dans la boue, dès le début du séchage (Figure VII-7a). Pendant les deux premiers jours (Figure VII-7b), la température augmente rapidement pour atteindre entre 60 °C au cœur de la boue et la partie supérieure de la cuve, près de l'axe du cylindre, et 62 °C dans les périphéries latérales et au fond de la cuve. Les deux premiers jours correspondent à la période de chauffage de la boue. Une telle répartition est attendue en raison des conditions aux limites imposées (température constante aux parois

métalliques et au fond) et de l'évaporation de l'eau libre à la surface supérieure de la boue. L'évaporation de l'eau consomme de l'énergie [19] et impose une valeur de température, à l'interface gaz/solide, légèrement inférieure à la température extérieure chaude (62 °C). Au-delà de deux jours, la température de la boue augmente lentement avec le temps pour atteindre la température imposée à la paroi (62 °C) à la fin du processus de séchage après 84 jours (Figure VII-7c). Les évolutions de la température numérique et expérimentale sont concordantes comme cela a déjà été démontré dans la Figure VI-9.

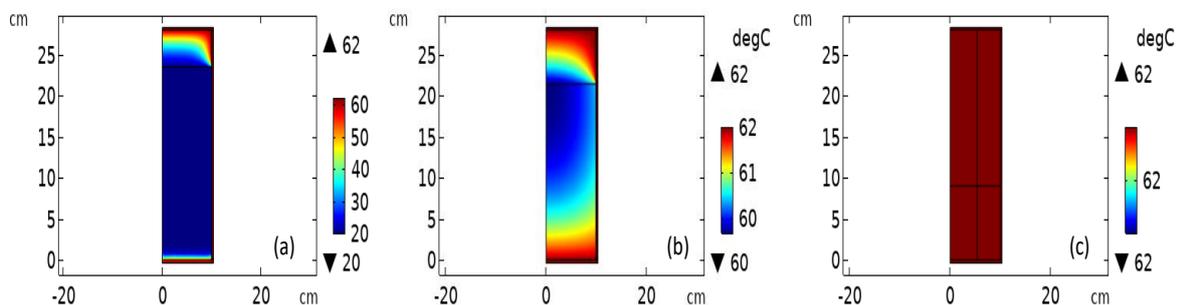


Figure VII-7 : Simulation (modèle 2) de l'évolution de la température au cours du séchage de la boue B à l'échelle de la maquette, à 200 mbar, 62 °C et  $HR = 53\%$  à (a)  $t = 0$  j; (b)  $t = 2$  j et (c)  $t = 84$  j.

Pour la teneur en eau spécifique, une valeur initiale de 1 est prise pour toute la géométrie de la boue (Figure VII-8a). Après cinq jours de séchage, la teneur en eau spécifique est réduite à 0,46 à la surface supérieure et à 0,79 dans le volume restant de la boue, ce qui crée une couche de faible teneur en eau spécifique à l'interface (Figure VII-8b). Le gradient de teneur en eau spécifique est important entre la couche supérieure et le reste du volume de la boue (variation de 33 % de la teneur en eau spécifique). Il est dû au flux d'évaporation initié au départ uniquement à l'interface supérieure. Le rapport  $V/V_0$  du volume de boue est de 91 % après cinq jours, accompagné seulement d'un retrait axial.

À mesure que le séchage progresse, la teneur en eau spécifique diminue progressivement et la boue se rétracte, uniquement dans le sens axial, jusqu'à 45 jours de séchage. Cette période correspond à la partie 1 de la courbe de vitesse de séchage (Figure VII-9), période durant laquelle la vitesse de séchage et la teneur en eau diminuent

simultanément (cf. chapitre II - Figure II-6). Après 45 jours, le rayon de la boue commence à diminuer, créant une nouvelle surface d'échange latérale entre la boue et le milieu environnant. En conséquence, un nouveau flux d'évaporation est initié sur le côté latéral, créant des zones concentriques plus ou moins sèches (Figure VII-8c et d). Ainsi, le front d'évaporation, qui sépare les zones sèches et humides de la boue, se déplace à partir de la position horizontale pour obtenir une forme d'arc. Un gradient significatif de la teneur en eau spécifique existe toujours entre la zone sèche concentrique externe et la zone centrale humide (variation de 27 % de la teneur en eau spécifique). La réduction de la teneur en eau s'accompagne d'un retrait du volume, de sorte que le rapport  $V/V_0$  du volume de la boue est égal à 51 % pour une teneur en eau spécifique moyenne  $X/X_0 = 0,47$  après 45 jours (Figure VII-8c). La création de la nouvelle surface d'échange entraîne une modification de la pente de la courbe de la vitesse de séchage, la forte pente de la partie 1 s'adouciissant en partie 2. L'atténuation de la diminution de la vitesse de séchage reflète l'augmentation du taux d'évaporation grâce à la surface d'échange supplémentaire (surface latérale) [3, 4]. La teneur en eau spécifique et le volume de boue continuent à diminuer simultanément pendant une période pouvant aller jusqu'à 80 jours.

Après 80 jours, à la valeur critique de la teneur en eau spécifique globale  $X_{cr}/X_0 = 0,06$  ( $X_{cr} = 23\%$ ), le volume de la boue ne diminue plus, bien que la teneur en eau continue à diminuer (Figure VII-8d). Le volume de la boue atteint une valeur minimale de 11 % à la valeur critique de la teneur en eau spécifique (Figure VII-8d). La teneur en eau spécifique de la boue continue alors à diminuer à volume constant jusqu'à ce qu'elle atteigne l'équilibre ( $X_e/X_0 = 0,02$ ) à la fin du séchage (Figure VII-8e). A noter qu'en 70 jours, la vitesse de séchage diminue fortement en raison de l'évaporation de l'eau libre et de la présence d'eau liée uniquement, comme le montre la partie (3) de la Figure VII-9. Le taux de séchage continue à diminuer avec la réduction de l'eau jusqu'à ce qu'il devienne nul à la fin du séchage lorsque la boue atteint sa teneur en eau d'équilibre.

Pendant le séchage, le front d'évaporation, qui sépare les zones sèches et humides de la boue, se déplace vers le cœur de la boue en raison du retrait du front d'eau libre dans la même direction [20]. Il est possible de noter que le rapport volumique final expérimental et simulé de la boue rétractée dans la cuve ( $V/V_0 = 11\%$ ) sont concordants. Le rapport volumique final de la boue B réduite dans la cuve est également équivalent à celui des petits échantillons de 30 g de boues B séchées précédemment dans le cadre de ce travail (Figure IV-5b). Ceci confirme le comportement homogène des boues par rapport au phénomène de retrait. Il est possible de noter que les évolutions expérimentales et simulées de la teneur en eau spécifique suivent la même tendance que celle indiquée par les Figures VI-7 et VI-8. En revanche, il y a une légère différence entre les évolutions expérimentales et simulées. Il y a également une légère différence entre la teneur en eau spécifique à l'équilibre expérimentale et simulée ( $((X_e/X_0)_{sim} = 0,02$  et  $(X_e/X_0)_{exp} = 0,0005$ ), qui est due à la valeur d'entrée fixée de l'humidité relative. L'humidité relative de l'air ambiant est considérée comme constante dans le modèle 2 au fil du temps. En revanche, on constate expérimentalement que l'humidité relative diminue avec le temps pendant le séchage de la boue dans la cuve (Figure V-14). Ceci est dû à la perte d'eau et au retrait de la boue conduisant à l'augmentation de l'espace du mélange gazeux à l'intérieur de la cuve. Il en résulte un léger décalage entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation des évolutions de la teneur en eau en raison de la sous-estimation du gradient de pression de vapeur entre la boue et le milieu environnant. Cela conduit également à une surestimation de la teneur en eau par le modèle 2.

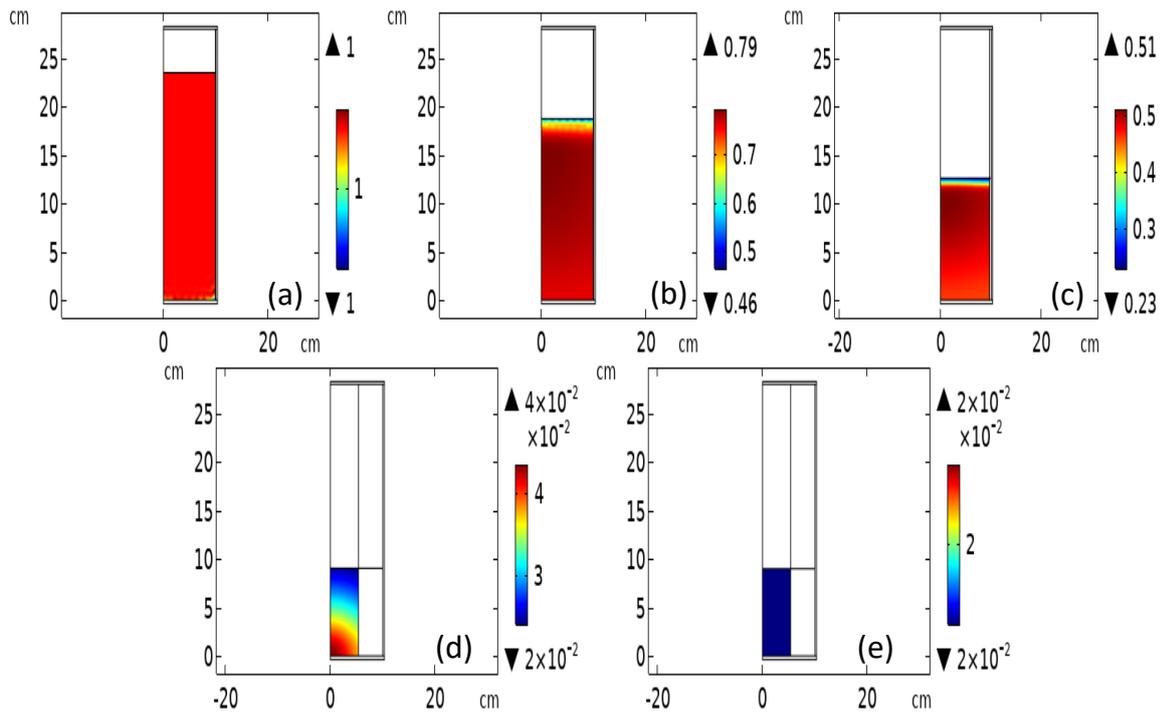


Figure VII-8 : Simulation (modèle 2) de l'évolution de la teneur en eau spécifique au cours du séchage de la boue B à l'échelle de la maquette, à 200 mbar, 62 °C et  $HR = 53\%$  à (a)  $t = 0$  j; (b)  $t = 5$  j; (c)  $t = 45$  j; (d)  $t = 80$  j et (e)  $t = 84$  j.

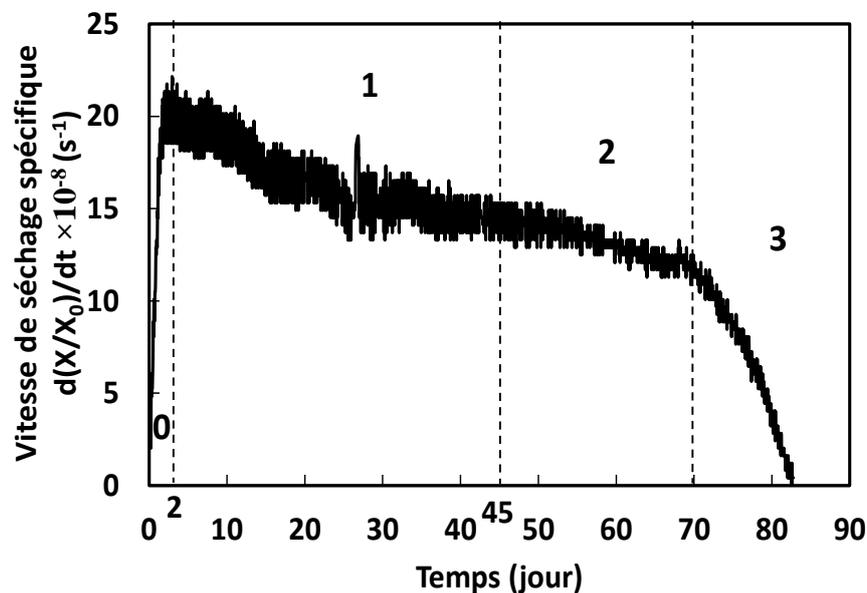


Figure VII-9 : Évolution de la vitesse de séchage spécifique expérimentale au cours du temps déterminée à  $HR = 46\%$ , 65 °C et pression atmosphérique – essai 1.

## 2.2. Critiques des hypothèses de modélisation

Dans cette partie, les hypothèses utilisées dans la modélisation numérique (tant à petite échelle qu'à l'échelle de la maquette du laboratoire) seront critiquées en fonction des résultats

expérimentaux obtenus. L'objectif est de montrer que ces hypothèses sont compatibles avec le comportement expérimental des boues pendant le séchage.

Tout d'abord, il a été prouvé que la géométrie des boues reste un cylindre axisymétrique en 2D. En fait, le volume initial de la boue prend la forme cylindrique du petit pot (échantillons de 30 g) ou de la cuve de la maquette expérimentale, grâce à sa fluidité due à sa forte teneur en eau initiale (la boue A à  $X_0 = 210\%$  et la boue B à  $X_0 = 380\%$ ). Sur la base des résultats expérimentaux, on constate que la géométrie des échantillons séchés (échantillons de 30 g et de la maquette) reste également cylindrique pendant le séchage, quelle que soit sa teneur en eau (Figures IV-4 et V-15). Par conséquent, les flux de chaleur et de masse sont également axisymétriques en 2D.

En outre, la teneur en eau initiale s'avère homogène dans les petits échantillons de 30 g. En effet, l'étude micro-tomographique montre que la teneur en eau initiale des échantillons de boue de 30 g est uniforme d'après l'analyse du niveau de gris. Les échelles de gris des boues fraîches ( $X_0 = 210\%$ ) sont constantes tout au long des directions axiale et radiale (Figures IV-9). Cette distribution uniforme est due à l'étape de mélange des boues qui précède l'étape de remplissage de l'échantillon et qui conduit à un volume initial de boue homogène. Comme l'étape de mélange est également appliquée à l'échantillon de boue à l'échelle du laboratoire, sa teneur initiale en eau doit donc être uniforme. En ce qui concerne la répartition initiale de la température, les échantillons de boues sont préparés et maintenus à température ambiante pendant un certain temps jusqu'à ce que leur température soit uniforme avant d'être introduits dans l'étuve. Ceci est confirmé par les valeurs expérimentales initiales de température enregistrées par les thermocouples à l'intérieur de la cuve. Les valeurs initiales de température se révèlent être uniformes partout dans la boue et égales à la température ambiante ( $20\text{ }^\circ\text{C}$ ) (Figure V-11).

La teneur en eau initiale des boues étant élevée dans les échantillons de 30 g et dans la maquette, on considère que ce milieu poreux est initialement saturé. Ceci est confirmé par les résultats micro-tomographiques qui montrent que la fraction volumique initiale du gaz dans le petit échantillon de boue A est nulle sur toute la géométrie (Figure IV-7). Comme la boue B ( $X_0 = 380 \%$ ) a une teneur en eau initiale plus élevée que la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ), le milieu poreux de la boue B fraîche est donc également initialement saturé.

De plus, il a été démontré également que l'utilisation du modèle de diffusion (équation de Richard), qui décrit le transfert d'eau dans les porosités des boues, au lieu du modèle mécanistique, est faisable et avantageuse. En fait, les résultats des simulations obtenues sur la base du modèle de diffusion sont en accord avec les résultats expérimentaux à différentes échelles (Figures VI-3 et VI-7). En effet, l'utilisation d'une diffusivité d'eau apparente, qui regroupe tous les mécanismes de transfert d'eau en un seul coefficient apparent qui dépend de la teneur en eau et de la température, est une méthode pratique et a été utilisée par de nombreux autres auteurs pour simuler le séchage de différents matériaux [21-23]. En fait, le modèle de diffusion a pu être obtenu à partir du modèle mécanistique avec quelques simplifications qui ont été appliquées au séchage de milieux poreux tels que les boues [24].

D'autre part, l'équation de transfert d'eau prend en compte le phénomène de retrait en incluant le coefficient de retrait  $\beta$ . Le coefficient de retrait s'avère identique pour les petits échantillons de boue et les échantillons de boue à l'échelle de la maquette du laboratoire ayant la même teneur en eau initiale. En effet, le rapport volumique final  $V/V_0$  des échantillons de boues B séchées à petite échelle (30 g) et à l'échelle de la maquette (résultant des essais de séchage (1) et (3)), est déterminé expérimentalement et est égal à 11-12 % (Équation IV-6 et paragraphe V-3.3). Cela confirme que le coefficient de retrait  $\beta$ , qui est déterminé expérimentalement sur des échantillons à petite échelle, pourrait être utilisé à plus grande échelle. Cela confirme également le comportement homogène de la boue vis-à-vis du

phénomène de retrait. De plus, il a été prouvé que la déformation géométrique est axisymétrique en 2D. En effet, les échantillons de boue séchée et rétractée (30 g et échantillons à l'échelle de la maquette) ont toujours une géométrie cylindrique (Figures IV-4 et V-15), ce qui confirme l'hypothèse ci-dessus. En revanche, le coefficient de retrait  $\beta$  s'avère dépendant de la teneur en eau initiale de la boue puisqu'il dépend du volume initial de la boue, donc des fractions volumiques liquides/solides initiales. Par exemple, la boue A ( $X_0 = 210\%$ ) et la boue B ( $X_0 = 380\%$ ) ont des coefficients de retrait différents qui sont respectivement égaux à 9,1 et 13,3.

En outre, la masse volumique apparente des boues est déterminée expérimentalement et on constate qu'elle ne dépend pas seulement de la teneur en eau spécifique, mais aussi du rapport des volumes de la boue réduite, comme indiqué dans les hypothèses du modèle et comme l'ont constaté d'autres auteurs [25, 26].

Quant à la réactivité chimique, le modèle numérique actuel ne comprend pas de module de réaction chimique pour simuler la précipitation du sel qui se produit pendant le séchage. En revanche, l'effet de la présence de sels solubles dans la solution interstitielle sur l'évaporation est pris en compte dans l'activité de l'eau et la capacité thermique. L'activité de l'eau est déterminée expérimentalement et prend en compte la composition chimique de la solution interstitielle ainsi que son isotherme de désorption. En outre, l'effet des sels solubles sur la diffusion d'eau est pris en compte par le coefficient de diffusion d'eau apparent, puisqu'il est également déterminé expérimentalement.

Dans ce travail de modélisation, l'humidité relative de l'air ambiant est considérée comme constante au cours du temps. Cette hypothèse est valable dans le cas du séchage de petits échantillons de 30 g. En effet, les petits échantillons sont séchés dans un dessiccateur contenant une solution saline qui impose une humidité relative constante pendant le séchage. Alors que dans le cas d'un séchage dans la maquette, on constate expérimentalement que l'humidité

relative diminue avec le temps. Ceci est dû à la perte d'eau et au retrait des boues qui agrandit l'espace du mélange gazeux à l'intérieur de la cuve. Toutefois, cette hypothèse pourrait être valable puisque la réduction de l'humidité relative ne dépasse pas 11 % de sa valeur initiale. Cela conduit à un léger décalage entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation des évolutions de la teneur en eau. Cela conduit également à une teneur en eau à l'équilibre simulée qui est légèrement supérieure à la valeur expérimentale. Pour éviter ce problème, un système d'équation supplémentaire pourrait être ajouté au niveau du volume du mélange gazeux pour tenir compte du transfert d'eau et de l'évolution de l'humidité relative à l'intérieur du mélange gazeux de la cuve. Ainsi, l'humidité relative prise en compte est co-dépendante de l'évaporation de l'eau : sa valeur dépend et influence l'évaporation de l'eau et le taux de séchage.

Sur la base de toutes les hypothèses valables ci-dessus, il est clair que les boues ont un comportement homogène pendant le séchage, indépendamment de l'échelle évaluée. Il est alors possible d'élargir le modèle de séchage de l'échelle de l'échantillon de boue de 30 g, à l'échelle de la maquette du laboratoire et enfin à l'échelle du fût industriel.

### 2.3. Étude paramétrique

Après avoir validé le modèle numérique de séchage à l'échelle de la maquette du laboratoire, une étude paramétrique est menée. Cette étude vise à déterminer l'effet des paramètres opératoires (température et pression) ainsi que de la configuration géométrique sur les performances du processus de séchage. Sachant que la boue séchée finale se présente sous la forme d'un cake physiquement et chimiquement stable, ayant une teneur en eau d'équilibre homogène à différentes échelles et dans différentes conditions de fonctionnement de température [35-65] °C et de pression absolue [200-1000] mbar. Par conséquent, l'étude paramétrique se concentre sur le facteur de temps de séchage requis. On sait déjà qu'à une température élevée, une faible humidité relative/pression et une grande surface d'échange, le séchage est favorisé et le temps de séchage requis est plus court. L'objectif de cette étude est de

fournir des informations quantifiées sur l'évolution du temps de séchage en fonction de la modification des paramètres désignés.

Dans un premier temps, plusieurs simulations sont réalisées à différentes températures de chauffage environnantes entre 35 et 65 °C, afin de déterminer l'évolution du temps de séchage nécessaire par rapport à la température imposée. Comme le montre la Figure VII-10, le temps de séchage augmente de manière exponentielle avec la diminution de la température de chauffage. Par exemple, le temps de séchage requis à 62 °C est de 84 jours, il diminue à 80 jours à 65 °C et correspond à 5 % du gain relatif en temps de séchage. Au contraire, le temps de séchage requis devient plus long à basse température, il prend respectivement 105 et 185 jours avec une perte relative de 24 et 118 % du temps de séchage à 55 et 35 °C. Une baisse de 10 °C (de 65 à 55 °C) de la température de chauffage entraîne une perte relative de 31 % du temps de séchage requis.

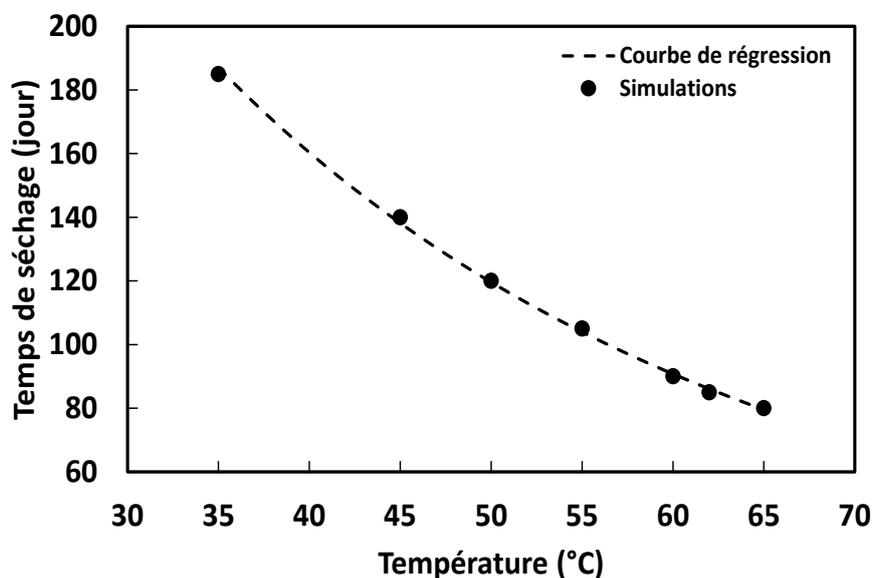


Figure VII-10 : Effet de la température sur le temps de séchage requis de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale à  $HR = 53 \%$  et 200 mbar.

Plusieurs simulations sont également réalisées avec le modèle 2 à différentes pressions absolues entre 200 et 1000 mbar, afin de déterminer l'évolution du temps de séchage nécessaire en fonction de pression imposée. Comme le montre la Figure VII-11, le temps de séchage

augmente de manière exponentielle avec l'augmentation de la pression absolue en raison de la diminution du gradient de pression de la vapeur d'eau. Par exemple, le temps de séchage requis à 200 mbar est de 84 jours, il devient plus long à une pression plus élevée et prend respectivement 160 et 230 jours avec une perte relative de 91 et 174 % du temps de séchage à 400 et 1000 mbar.

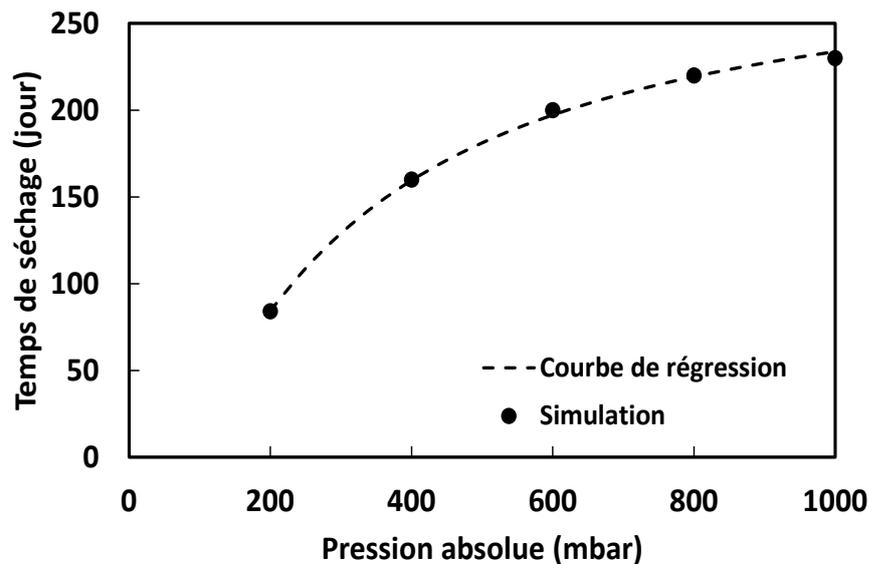


Figure VII-11 : Effet de la pression absolue sur le temps de séchage requis de la boue B à l'échelle de la maquette expérimentale à 62 °C.

D'autre part, plusieurs simulations sont réalisées avec le modèle validé à l'échelle du laboratoire en faisant varier les dimensions de la cuve (rayon/ hauteur) tout en gardant le même volume initial de boues. L'étendue de cette étude est délimitée par des valeurs de rayon comprises entre 7 et 28 cm. La Figure VII-12 montre l'évolution du temps de séchage nécessaire en fonction du rayon (R) de la cuve.

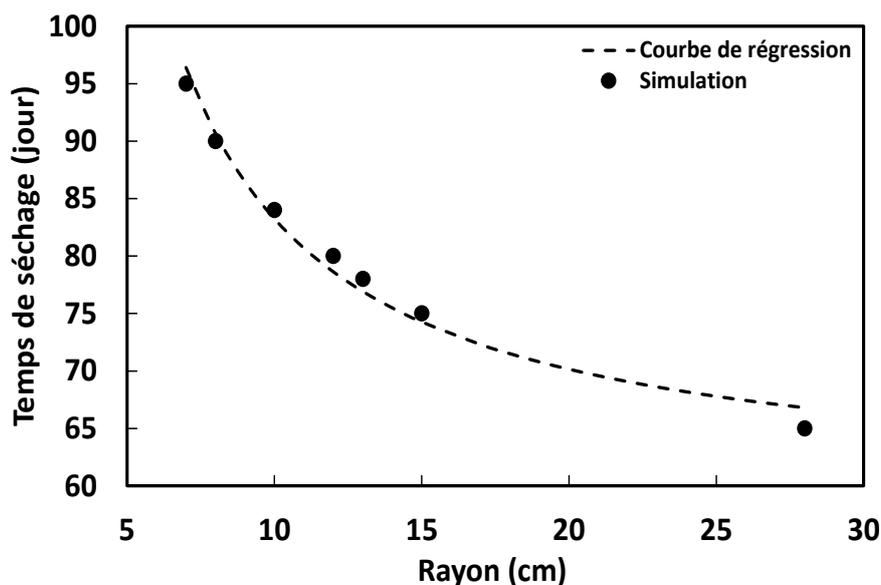


Figure VII-12 : Effet des dimensions de la cuve sur le temps de séchage requis de la boue B à 200 mbar, 62 °C et  $HR = 53 \%$ .

Comme prévu, il est constaté que le temps de séchage requis, déterminé par les simulations, diminue de manière exponentielle en augmentant le rayon de la cuve. La réduction du temps de séchage requis avec l'augmentation du rayon à l'échelle du laboratoire est due à l'augmentation de la surface supérieure de la boue qui augmente la vitesse de séchage et accélère le processus de séchage. Il est à noter qu'une période importante du séchage a lieu avant que le rayon de la boue ne rétrécisse, ce qui explique l'effet de l'augmentation de la surface d'échange rayon/ surface supérieure sur l'accélération du séchage. Par exemple, le temps de séchage requis dans une cuve de 10 cm de rayon est de 84 jours. Il diminue respectivement à 75 et 65 jours dans une cuve de 15 et 28 cm de rayon, soit 11 et 23 % du gain relatif en temps de séchage.

#### 2.4. Étude de sensibilité

Après avoir validé le modèle à l'échelle de la maquette du laboratoire et ses hypothèses basées sur les résultats expérimentaux, une étude de sensibilité est menée. L'étude de sensibilité vise à identifier les paramètres d'entrée déterminants qui affectent les résultats de la simulation. Les paramètres étudiés sont : la conductivité thermique effective ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ ), la capacité calorifique ( $J.g^{-1}.K^{-1}$ ) et le terme de cinétique d'évaporation ( $s^{-1}$ ). Ils ont été choisis afin de tester les

principaux paramètres affectant les mécanismes de transfert de chaleur et de masse. L'étude de sensibilité est réalisée en faisant varier les propriétés de la boue entre 80 et 120 % de leurs valeurs réelles, comme cela se fait classiquement pour tenir compte de l'effet de  $\pm 20\%$  d'incertitude des paramètres. Comme le montrent les Figure VII-13 et Figure VII-14, l'effet de la conductivité thermique effective et de la capacité calorifique est presque insignifiant dans le cas du séchage des boues B dans la cuve de la maquette expérimentale. Cela indique que le transfert de chaleur n'est pas la phase déterminante/limitante du processus de séchage dans le modèle 2.

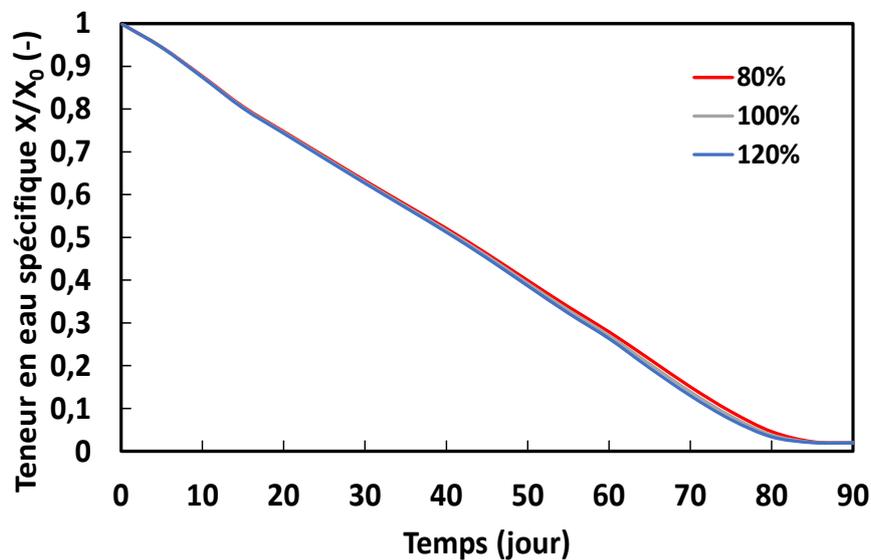


Figure VII-13 : Effet de la conductivité thermique effective sur les résultats de simulation du séchage de la boue B à 200 mbar, 62 °C et  $HR = 53\%$ .

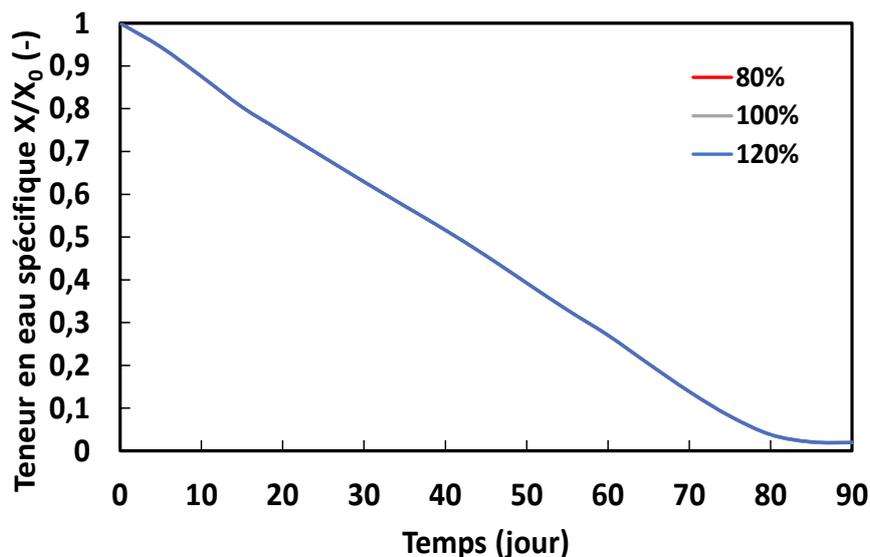


Figure VII-14 : Effet de la capacité calorifique sur les résultats de simulation du séchage de la boue B à 200 mbar, 62 °C et  $HR = 53 \%$ .

D'autre part, la Figure VII-15 montre l'effet du terme de cinétique d'évaporation  $K_{vap}$  sur les résultats de simulation des essais de séchage de la boue B dans la cuve de la maquette expérimentale. Comme cela a déjà été noté dans plusieurs travaux [16, 21], le terme de cinétique d'évaporation dépend des conditions opératoires (température, pression, humidité relative), ainsi que de la nature hygroscopique du matériau séché (représentée par son activité de l'eau  $a_w$ ) et affecte le temps de séchage de l'échantillon de boue.

On constate que le transfert de masse est le mécanisme déterminant et limitant du processus de séchage. Le terme de cinétique d'évaporation est crucial pour le calcul du temps de séchage puisqu'il dicte la force motrice du transfert de masse. Même une petite variation du terme cinétique d'évaporation ( $K_{vap}$ ) peut affecter de manière significative le temps de séchage. En effet, une augmentation de 20 % des valeurs de la  $K_{vap}$  à 62 °C, 200 mbar, permet de réduire le temps de séchage de 84 à 70 jours, soit 17 % de gain en temps de séchage. Au contraire, une diminution de 20 % des valeurs de la  $K_{vap}$  entraîne un allongement du temps de séchage à 100 jours, soit une augmentation de 19 % du temps de séchage.

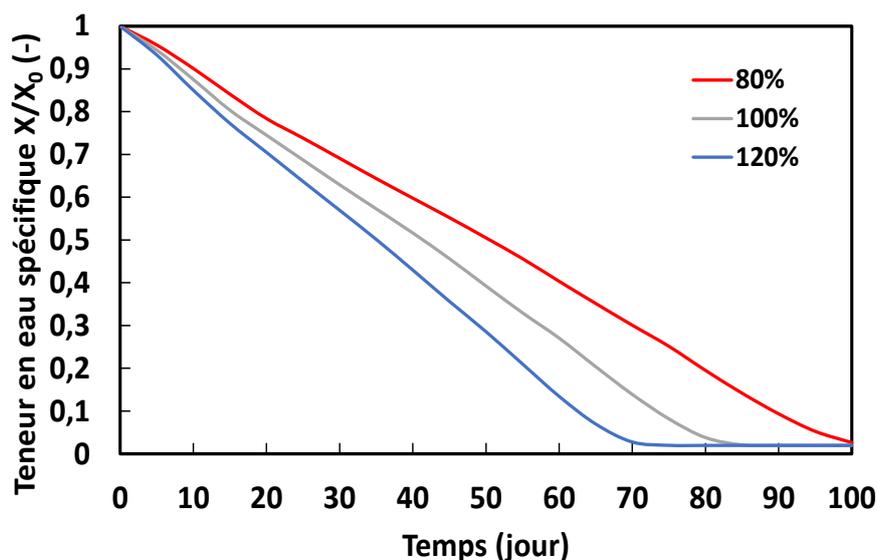


Figure VII-15 : Effet du terme de cinétique d'évaporation sur les résultats de simulation du séchage de la boue B à 200 mbar, 62 °C et  $HR = 53\%$ .

## 2.5. Simulation à l'échelle du fût industriel

Après avoir validé que les hypothèses utilisées dans les modèles de séchage 1 et 2 sont toujours valables à grande échelle, la géométrie du modèle en laboratoire est élargie pour simuler le séchage de la boue dans le fût industriel et pour prévoir le temps de séchage nécessaire. Le nouveau rayon et la hauteur totale sont fixés respectivement à 28 cm et 80 cm, avec une hauteur disponible de 80 % de la hauteur totale (c'est-à-dire 64 cm). La masse et le volume nets initiaux des boues sont respectivement de 187 kg et 159 L avec une teneur en eau initiale de 380 % (boue B). Sur la base des résultats de la simulation, le temps de séchage nécessaire pour atteindre l'équilibre et une teneur en eau spécifique homogène  $X_e/X_0 = 0,02$  dans l'ensemble du cake de boue stable, est de 1750 jours (4,8 ans). La courbe de la teneur en eau spécifique est divisée en trois parties principales (1, 2 et 3) comme le montre la Figure VII-16. Tout d'abord, la partie 1, au début de la courbe de séchage de 0 à 50 jours, est relativement courte et exprime une très légère pente qui reflète la période de préchauffage de la boue. Ensuite, la partie 2 consiste en une réduction rapide de la teneur en eau spécifique, jusqu'à atteindre une valeur de  $X/X_0 = 0,025$  après 1600 jours de séchage (4,4 ans). Au-delà de cette valeur commence la partie

3, où la teneur en eau spécifique diminue légèrement jusqu'à atteindre l'équilibre ( $X_e/X_0 = 0,02$  correspondant à un poids net à sec de 41 kg) après 1750 jours (4,8 ans).

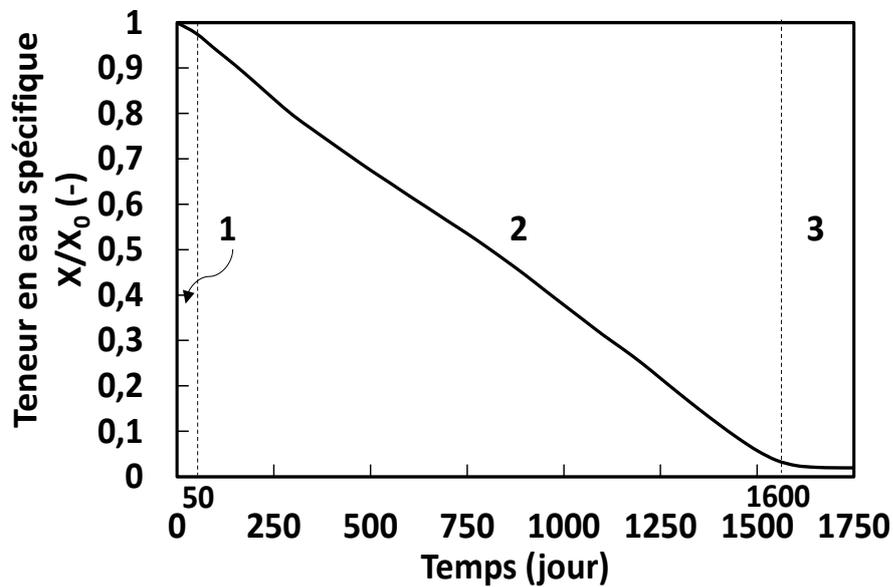


Figure VII-16 : Simulation de la teneur en eau spécifique au cours du séchage de la boue B ( $X_0 = 380\%$ ) à l'échelle du fût industriel à  $65\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $HR = 53\%$  et 200 mbar.

Le volume final de la boue est de 18 L. La Figure VII-17 montre l'évolution simulée du rapport des volumes au cours du séchage. La boue commence à rétrécir dès le début du processus de séchage en raison de l'élimination de l'eau (partie 1). Lorsque la teneur en eau spécifique globale atteint sa valeur critique ( $X_{cr}/X_0 = 0,06$ ) après 1500 jours, le volume de la boue cesse de réduire car les particules solides deviennent très serrées et ne peuvent plus s'approcher (partie 2). Le rapport volumique final de la boue rétrécie est de 11 %, égal à celui des modèles 1 et 2.

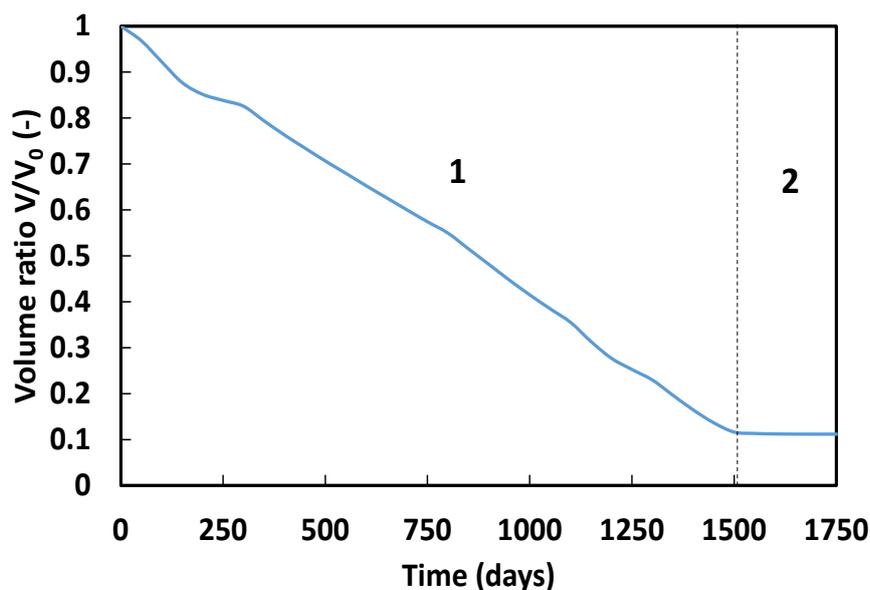


Figure VII-17 : Évolution du rapport des volumes simulé au cours du temps à l'échelle du fût industriel.

### 3. Conclusions

Les résultats de simulation de la distribution de la température et de la teneur en eau spécifique, pendant le séchage d'échantillons de boue de 30 g, en considérant le modèle 1 avec et sans retrait, sont interprétés. Les simulations de la teneur en eau spécifique avec retrait permettent une meilleure représentation des résultats expérimentaux. Le fait de négliger le phénomène de retrait pendant la modélisation conduit à sous-estimer la vitesse de séchage et donc à prévoir un temps de séchage plus long que celui réellement nécessaire pour sécher les boues. En outre, il a été confirmé que le séchage est favorisé à haute température et à basse pression absolue. D'autre part, les simulations à l'échelle de la maquette du laboratoire de la distribution de la température et de la teneur en eau spécifique se sont avérées concordantes avec les résultats expérimentaux, avec un léger décalage. Ce décalage pourrait être dû à l'hypothèse utilisée d'une humidité relative constante pendant le séchage. En effet, on constate que l'humidité relative dans le mélange gazeux diminue pendant le séchage. Toutefois, l'hypothèse d'une humidité relative constante reste valable, puisque sa réduction ne dépasse pas 11 % de la valeur initiale et que le décalage qui en résulte ne dépasse pas 10 %. Les hypothèses utilisées dans les travaux

de modélisation numérique sont validées sur la base des résultats expérimentaux acquis. Il a été prouvé que la géométrie de la boue reste un cylindre axisymétrique en 2D pendant le séchage. Les transferts de chaleur et de masse sont donc vérifiés comme étant axisymétriques en 2D. Il a également été démontré que l'utilisation du modèle de diffusion (équation de Richard) est faisable, avantageuse et donne des résultats précis. On constate que les boues ont un comportement homogène pendant le séchage, indépendamment de l'échelle étudiée. La boue séchée finale se révèle être un cake stable et homogène à différentes échelles. Ainsi, il a été possible d'agrandir la géométrie du modèle à l'échelle du fût industriel. Une étude paramétrique réalisée à l'échelle du modèle 2 montre que la réduction de 10 °C (de 65 à 55 °C) de la température de chauffage entraîne une perte de 31 % du temps de séchage nécessaire. Une étude de sensibilité réalisée sur le modèle 2 montre que le terme de cinétique d'évaporation est crucial pour la modélisation du séchage et que le transfert de masse est le mécanisme déterminant et limitant du processus de séchage. Dans le prochain chapitre, une conclusion générale sur l'ensemble des travaux sera faite.

## Références

- [1] Yuan, Y.; Tan, L.; Xu, Y.; Yuan, Y.; Dong, J. Numerical and Experimental Study on Drying Shrinkage-Deformation of Apple Slices during Process of Heat-Mass Transfer. *International Journal of Thermal Sciences*, **2019**, *136*, 539–548. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2018.10.042>.
- [2] Villa-Corrales, L.; Flores-Prieto, J. J.; Xamán-Villaseñor, J. P.; García-Hernández, E. Numerical and Experimental Analysis of Heat and Moisture Transfer during Drying of Ataulfo Mango. *Journal of Food Engineering*, **2010**, *98* (2), 198–206. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2009.12.026>.
- [3] Hawlader, M. N. A.; Ho, J. C.; Qing, Z. A Mathematical Model For Drying Of Shrinking Materials. *Drying Technology*, **1999**, *17* (1–2), 27–47. <https://doi.org/10.1080/07373939908917517>.
- [4] Pakowski, Z.; Głębowski, M.; Adamski, R. Modeling of Drying of Highly Shrinking Materials Using Hydrogels as an Example. *Drying Technology*, **2006**, *24* (9), 1075–1081. <https://doi.org/10.1080/07373930600778130>.
- [5] Chemkhi, S. Physico-Chemical and Mechanical Behavior of Natural Clay as a Porous Medium during Convective Drying. *Australian Ceramic Society Journal*, **2015**, *6* (3), 126–135. <https://doi.org/10.9734/ACSJ/2015/15746>.
- [6] Ketelaars, A. A. J. Drying Deformable Media Kinetics, Shrinkage And Stresses. *Drying Technology*, **1994**, *12* (4), 983–987. <https://doi.org/10.1080/07373939408960008>.
- [7] Cooper, A. R. Quantitative Theory of Cracking and Warping of Clay Bodies. *Ceramics Processing before Firing*, Ed. G.J. Onada and L.L. Henck, Wiley, New York, 1975, pp 261–276.
- [8] Dzyaloshinskii, I. E.; Lifshitz, E. M.; Pitaevskii, L. P. General Theory Of Van Der Waals' Forces. *Sov. Phys. Usp.*, **1961**, *4* (2), 153–176. <https://doi.org/10.1070/PU1961v004n02ABEH003330>.
- [9] Shahari, N.; Jamil, N.; Rasmani, Ka. Comparative Study of Shrinkage and Non-Shrinkage Model of Food Drying. *Journal of Physics: Conf. Ser.*, **2016**, *738*, 012087. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/738/1/012087>.
- [10] Reyes, A.; Eckholt, M.; Troncoso, F.; Efremov, G. Drying Kinetics of Sludge from a Wastewater Treatment Plant. *Drying Technology*, **2005**, *22* (9), 18.
- [11] Touil, A.; Chemkhi, S.; Zagrouba, F. Moisture Diffusivity and Shrinkage of Fruit and Cladode of *Opuntia Ficus-Indica* during Infrared Drying. *Journal of Food Processing*, **2014**, *2014*, 1–9. <https://doi.org/10.1155/2014/175402>.
- [12] Sander, A.; Tomas, S.; Skansi, D. The Influence Of Air Temperature On Effective Diffusion Coefficient Of Moisture In The Falling Rate Period. *Drying Technology*, **1998**, *16* (7), 1487–1499. <https://doi.org/10.1080/07373939808917472>.
- [13] Yaws, C. L. *The Yaws Handbook of Vapor Pressure: Antoine Coefficients*; Gulf Publication, **2007**.
- [14] Gómez-de la Cruz, F. J.; Palomar-Carnicero, J. M.; Casanova-Peláez, P. J.; Cruz-Peragón, F. Experimental Determination of Effective Moisture Diffusivity during the Drying of Clean Olive Stone: Dependence of Temperature, Moisture Content and Sample Thickness. *Fuel Processing Technology*, **2015**, *137*, 320–326. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2015.03.018>.
- [15] Methakhup, S.; Chiewchan, N.; Devahastin, S. Effects of Drying Methods and Conditions on Drying Kinetics and Quality of Indian Gooseberry Flake. *LWT - Food Science and Technology*, **2005**, *38* (6), 579–587. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2004.08.012>.
- [16] Péré, C.; Rodier, E. Microwave Vacuum Drying of Porous Media: Experimental Study and Qualitative Considerations of Internal Transfers. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, **2002**, *41* (5), 427–436. [https://doi.org/10.1016/S0255-2701\(01\)00161-1](https://doi.org/10.1016/S0255-2701(01)00161-1).
- [17] Arévalo-Pinedo, A.; Xidieh Murr, F. E. Influence of Pre-Treatments on the Drying Kinetics during Vacuum Drying of Carrot and Pumpkin. *Journal of Food Engineering*, **2007**, *80* (1), 152–156. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2006.05.005>.
- [18] Mitra, J.; Shrivastava, S. L.; Srinivasa Rao, P. Vacuum Dehydration Kinetics of Onion Slices. *Food and Bioproducts Processing*, **2011**, *89* (1), 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2010.03.009>.
- [19] Murru, M.; Giorgio, G.; Montomoli, S.; Ricard, F.; Stepanek, F. Model-Based Scale-up of Vacuum Contact Drying of Pharmaceutical Compounds. *Chemical Engineering Science*, **2011**, *66* (21), 5045–5054. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2011.06.059>.

- [20] Nadeau, J.; Puiggali, J. R. *Séchage Des Processus Physiques Aux Procédés Industriels*. Technique et Documentation-Lavoisier. Paris **1995**.
- [21] Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Léonard, A. Modeling and Simulation of Heat and Mass Transfer during Convective Drying of Wastewater Sludge with Introduction of Shrinkage Phenomena. *Drying Technology*, **2014**, *32* (1), 13–22. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.807281>.
- [22] Hassine, N. B.; Chesneau, X.; Laatar, A. H. Numerical Modeling of Heat and Mass Transfers under Solar Drying of Sewage Sludge. *Heat Transfer Research*, **2012**, *49* (4), 327–348. <https://doi.org/10.1615/HeatTransRes.2018017977>.
- [23] Luo, H.; Xia, W.; Xu, Y.; Jiang, Q. Diffusive Model with Variable Effective Diffusivity Considering Shrinkage for Hot-Air Drying of Lightly Salted Grass Carp Fillets. *Drying Technology*, **2013**, *31* (7), 752–758. <https://doi.org/10.1080/07373937.2012.755542>.
- [24] Puiggali, J. R.; Quintard, M.; Whitaker, S. Drying Granular Porous Media: Gravitational Effects In The Isenthalpic Regime And The Role Of Diffusion Models. *Drying Technology*, **1988**, *6* (4), 601–629. <https://doi.org/10.1080/07373938808916401>.
- [25] Talla, A.; Puiggali, J.-R.; Jomaa, W.; Jannot, Y. Shrinkage and Density Evolution during Drying of Tropical Fruits: Application to Banana. *Journal of Food Engineering*, **2004**, *64* (1), 103–109. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2003.09.017>.
- [26] Chemkhi, S. Séchage d'un milieu déformable non saturé : Modélisation du couplage hygromécanique. *Université Bordeaux I*, **2008**, 135.

## VIII. Conclusions

La production d'énergie nucléaire génère des déchets radioactifs qui doivent être stabilisés et confinés pour un stockage en sécurité. Parmi ces déchets figurent les boues, qui ont des origines, une composition chimique et un niveau de radioactivité différents et proviennent de divers processus. Le séchage de boues avant les phases de transport et de stockage est l'une des voies qui pourrait être choisie, afin d'éviter tout risque de corrosion et de radiolyse dans les conteneurs (production d' $H_2$  gazeux) et d'assurer leur stabilité. Le séchage sous vide est l'un des procédés envisagés pour conditionner les déchets de boues radioactives produites par l'industrie nucléaire. Dans ce contexte industriel, l'objectif du travail de thèse est d'étudier en détail le séchage des déchets radioactifs de type boues de coprécipitation. L'objectif de ce travail est ensuite de comprendre les mécanismes de séchage de la boue et de prédire son comportement lors du séchage. Cela implique d'étudier le comportement de la boue pendant le séchage et l'élimination de l'eau, afin de vérifier la possibilité d'obtenir une boue stable et homogène, exempte d'eau sous forme de cake.

Le travail de thèse comprend une étude expérimentale et une modélisation numérique des mécanismes de séchage de la boue. Dans ce contexte, il est essentiel de fournir des éléments permettant de définir le temps de séchage nécessaire pour atteindre une teneur en eau homogène à l'équilibre à l'intérieur du volume de boue séchée. Pour prédire le comportement des boues pendant l'élimination de l'eau, la modélisation numérique a été réalisée à l'aide de COMSOL-Multiphysics 3.5a.

Afin de simuler numériquement les mécanismes de séchage, d'un côté une pré-étude a consisté à déterminer les propriétés intrinsèques de deux boues modèles A et B. Ces propriétés font partie des données d'entrée du modèle numérique qui régit les mécanismes de séchage. Les expériences ont montré que la conductivité thermique effective diminue linéairement avec la teneur en eau de  $2,60 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  pour  $X = 210 \%$  jusqu'à  $1,71 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  pour  $X = 0 \%$ . La

capacité calorifique diminue exponentiellement de  $3,37 \text{ J. g}^{-1}. \text{ K}^{-1}$  pour  $X = 380 \%$  jusqu'à  $0,81 \text{ J. g}^{-1}. \text{ K}^{-1}$  pour  $X = 0 \%$ , en raison de la réduction de l'eau et de la concentration en sels solubles. Le modèle de Henderson semble être le plus approprié pour décrire l'isotherme expérimental de sorption de l'eau des boues. Le coefficient de retrait semble ne pas dépendre que de la teneur en eau initiale de la boue. Il est égal à 9,1 pour la boue A ( $X_0 = 210 \%$ ) et 13,3 pour la boue B. ( $X_0 = 380 \%$ ). La boue se contracte linéairement jusqu'à atteindre sa teneur en eau critique  $X_{cr} = 23 \%$ , puis elle est maintenue à volume constant jusqu'à la fin du séchage avec un rapport de volume  $V/V_0$  égal à 22 % et 12 % respectivement, pour les boues A et B. En-dessous de cette valeur, les particules solides sont très serrées et ne peuvent plus s'approcher. La diffusivité d'eau apparente est déterminée numériquement à partir de la cinétique expérimentale de séchage et on constate qu'elle augmente avec la réduction de l'eau et de la température. La méthode d'analyse du niveau de gris, appliquée à l'étude micro-tomographique, est utilisée avec succès pour accéder à la teneur en eau des échantillons de boue.

D'un autre côté, les mécanismes qui se produisent pendant le séchage ont été étudiés. Ces mécanismes sont identifiés comme des transferts de chaleur et de masse, ainsi que le phénomène de retrait qui se produisent simultanément dans le milieu poreux de la boue. Les mécanismes de séchage ont ensuite été associés à des lois et des équations mathématiques afin de modéliser le processus de séchage.

Le flux d'eau non isotherme dans les pores non saturés de la boue est décrit par l'équation de Richard (modèle de diffusion), exprimée avec un coefficient de diffusion d'eau apparent. Le coefficient de diffusion d'eau apparent est fonction de la teneur en eau et de la température et doit être déterminé expérimentalement. Il a été démontré l'aspect pratique, la précision et les avantages de l'utilisation du modèle de diffusion au lieu d'un modèle mécanistique complexe, pour simuler le transfert de masse au cours du séchage de la boue. D'autre part, le transfert de chaleur peut être mathématiquement exprimé par la loi de Fourier sur la conduction de la

chaleur puisqu'il s'agit d'un processus de séchage par conduction. Le coefficient de retrait apparaît comme un paramètre crucial à prendre en compte, lors de la modélisation du séchage de milieux poreux très déformables tels que les boues. Il est impliqué dans le transfert de masse et affecte le coefficient de diffusion.

Le développement du modèle numérique a été abordé en plusieurs séquences afin de valider l'ensemble des équations choisies. Dans un premier temps, un modèle thermo-hydro-mécanique à l'échelle d'un petit échantillon de boue (30 g) a été créé et validé. Le modèle de séchage est basé sur des équations de transfert de chaleur et de masse, calculées en géométrie déformable qui compte les phénomènes de retrait. Le modèle à petite échelle (modèle 1) s'avère capable de prédire avec précision ce qui se passe réellement pendant le séchage par rapport aux résultats expérimentaux. Afin de démontrer l'importance de la prise en compte du phénomène de retrait, le modèle 1 a été utilisé en annulant le retrait et a conduit à des résultats nettement dégradés. La sous-estimation de la vitesse de séchage est peut-être due à la sous-estimation de la surface d'échange des boues ; ainsi qu'à la négligence du raccourcissement du chemin parcouru par l'eau à l'intérieur de la boue poreuse. En outre, les simulations à différentes conditions opératoires s'avèrent toujours concordantes avec les résultats expérimentaux.

La deuxième étape visait à appliquer le même système d'équations à une géométrie intermédiaire et homothétique au fût industriel. L'objectif du modèle à l'échelle intermédiaire est d'évaluer l'impact du changement d'échelle sur la précision de la simulation. À cette fin, une maquette expérimentale instrumentée a été conçue notamment pour valider le modèle de séchage. L'instrumentation comprend un ensemble de capteurs pour enregistrer la température, la pression et l'humidité relative, ainsi qu'une balance industrielle pour suivre l'évolution de la perte d'eau. Les simulations du modèle numérique à l'échelle de la maquette (modèle 2) montrent une cohérence avec les résultats expérimentaux pour les profils de température et de teneur en eau spécifique globale. Les hypothèses utilisées dans le travail de modélisation

numérique sont validées sur la base des résultats expérimentaux acquis. On constate que la boue a un comportement homogène pendant le séchage à différentes échelles, et que la boue séchée finale est sèche en forme de cake, homogène et stable. Ainsi, il est possible d'élargir la géométrie du modèle à l'échelle du fût industriel afin de prédire le temps de séchage nécessaire pour atteindre la siccité minimale. Une étude paramétrique est effectuée sur le modèle 2, et donne des informations quantifiées sur l'effet de la variation de la température et de la pression absolue sur le temps de séchage requis. Une étude de sensibilité est également réalisée, et montre que la cinétique d'évaporation est déterminante pour la modélisation du séchage et que le transfert de masse est le mécanisme limitant du processus de séchage.

Les simulations de la teneur en eau spécifique du modèle 2 ont un léger décalage par rapport aux résultats expérimentaux correspondants. Cela peut être attribué à l'hypothèse d'une humidité relative constante pendant le séchage. En fait, on constate que l'humidité relative du mélange gazeux entourant la boue diminue pendant le séchage. Toutefois, l'hypothèse d'une humidité relative constante reste valable, puisque sa réduction ne dépasse pas 11 % de la valeur initiale et que le décalage qui en résulte ne dépasse pas 10 % par rapport aux résultats expérimentaux.

Par conséquent, le modèle numérique pourrait être amélioré afin de minimiser le décalage entre la simulation et les données expérimentales. L'amélioration pourrait consister à coupler le modèle existant avec un système d'équations, appliqué au volume du mélange gazeux pour prendre en compte le transfert d'eau et l'évolution de son humidité relative.

## Annexe A : Traitement des images

Pour faciliter la compréhension des démarches du traitement de l'image, les outils et les termes utilisés dans ce travail sont décrits ci-dessous [1, 2].

**Seuillage** : c'est une technique simple de binarisation de l'image. Elle consiste à transformer une image en niveau de gris en une image dont les valeurs des voxels ne peuvent avoir que la valeur 1 ou 0. On parle alors d'une image binaire ou d'une image en noir et blanc.

**Érosion et dilation** : sont les deux opérations fondamentales sur le traitement des images morphologiques. L'érosion et la dilation sont toutes deux produites par l'interaction d'un ensemble appelé élément structurant avec un ensemble de voxels d'intérêt dans l'image. L'élément structurant a à la fois une forme (cubique) et une origine.

**Érosion** : l'érosion d'une image correspond à tous les points de l'image pour lesquels l'élément structurant, centré sur ces différents points, est entièrement inclus.

**Dilatation** : la dilatation ajoute à l'image originale un ensemble de points pour lesquels l'élément structurant, centré sur ces différents points, a une intersection non nulle avec l'image initiale.

**Ouverture** : c'est la dilatation de l'érosion d'une image en utilisant le même élément structurant. Elle permet d'éliminer les petits objets (comme les artefacts) et d'adoucir les contours

**Fermeture** : c'est l'érosion de la dilatation d'une image en utilisant le même élément structurant. Elle permet de bloquer les canaux étroits et de supprimer les petits trous.

**“Bounding box”** : elle consiste à dessiner le plus petit rectangle contenant l'objet.

Les opérations successives effectuées sur les images 3D sont résumées dans l'organigramme de la Figure 18, sur la base d'une méthodologie de travail similaire [3–7]. A la différence des autres travaux basés sur le traitement d'images en coupe 2D, le traitement de l'image est ici appliqué directement sur les images 3D. L'image originale (Figure 19a) est obtenue à partir du fichier '.dat' du processus de reconstruction. Tout d'abord, la méthode ISO-50% de transformation de seuil à deux niveaux proposée par le logiciel VGSTUDIO [8], est appliquée sur l'image originale après reconstruction.

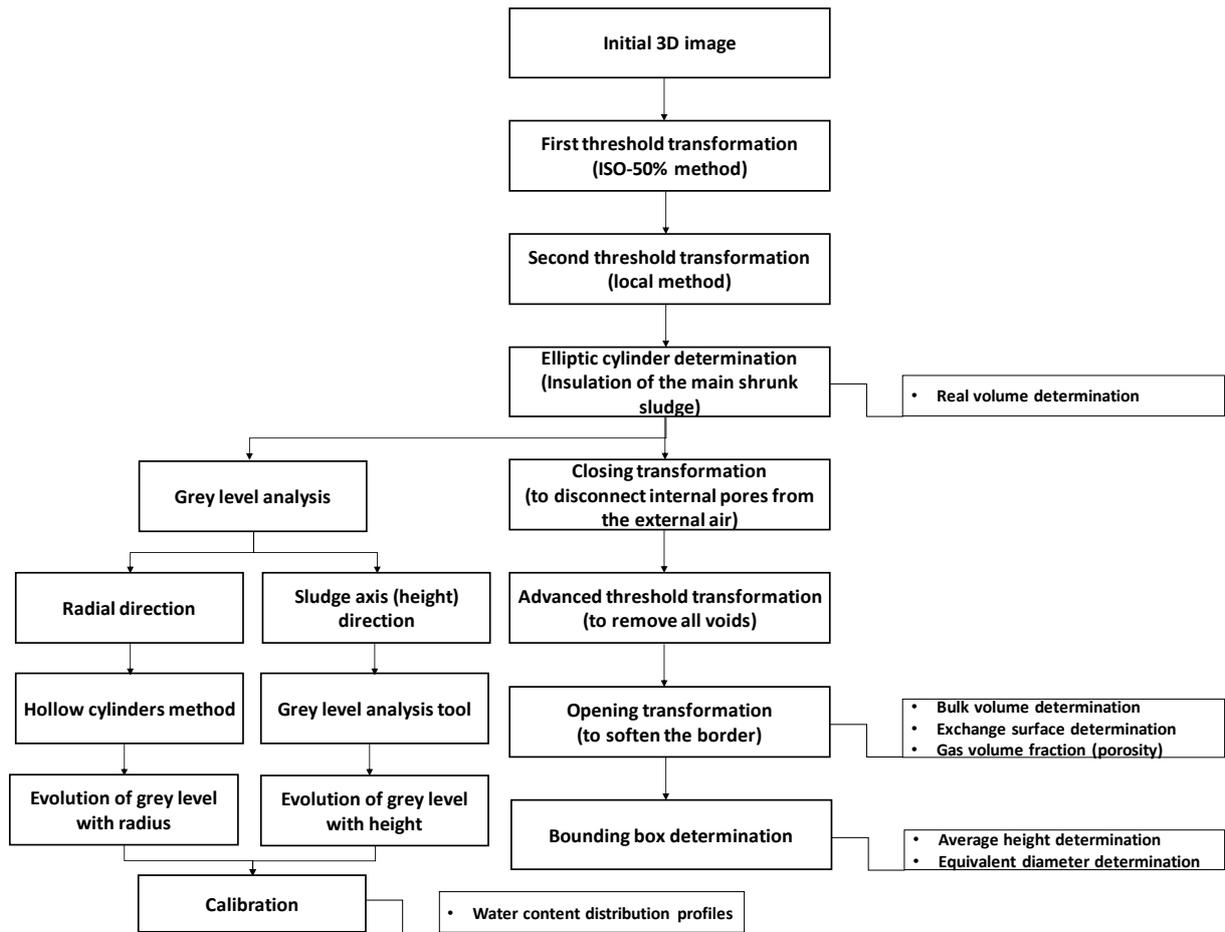


Figure 18 : Organigramme des étapes du traitement de l'image.

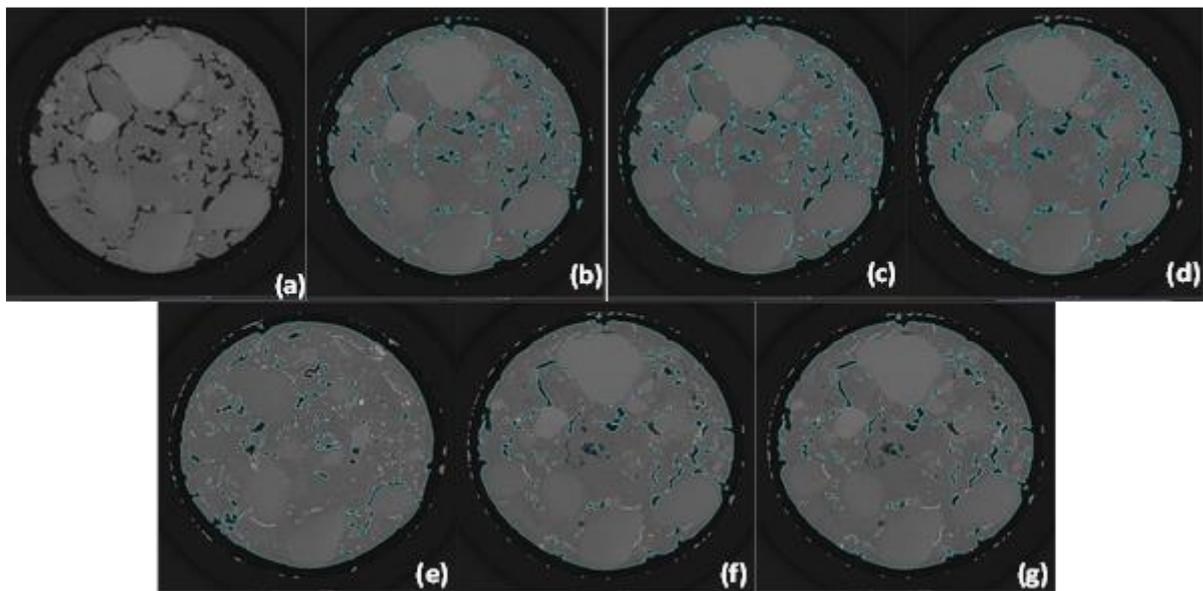


Figure 19 : Sections transversales 2D d'un échantillon humide (a) à l'image initiale, (b) après premier seuillage, (c) après deuxième seuillage, (d) après détermination du cylindre elliptique, (e) après transformation de fermeture, (f) après élimination des vides et (g) après transformation d'ouverture.

C'est l'un des processus de segmentation les plus rapides et les plus simples ; le seuillage ISO-50 % utilise une valeur seuil globale statique basée sur tous les voxels présents dans le volume. Cette première transformation permet de supprimer tous les pixels de grande valeur appartenant à la paroi du porte-échantillon (Figure 19b). Néanmoins, le seuillage ISO-50 % n'est pas suffisant pour segmenter correctement un ensemble de données 3D comme l'ont constaté Tan et al.[9]. Par conséquent, une deuxième méthode de seuillage avancée est appliquée (méthode locale ou méthode de seuillage avancée) [10] pour segmenter localement l'ensemble de données, en fournissant des informations fiables même dans un ensemble de données altérées par des artefacts. Un seuillage local est appliqué sur l'image résultante (correction du premier seuillage) afin de bi-niveler précisément cette image en phases solides et pores humides en utilisant l'outil de détermination de surface du logiciel VGSTUDIO (Figure 19c). Lors du séchage des échantillons, une petite quantité de boue est restée sur la paroi interne du porte-échantillon. Afin de limiter notre étude sur le volume principal de boue réduite, un cylindre elliptique est dessiné pour obtenir une image qui contient uniquement le cylindre principal de boue réduite sans les parois internes du porte-échantillon (Figure 19d) (il n'y a plus de marques bleues sur les parois internes du porte-échantillon). À partir de cette image, on détermine le volume réel de la matière solide humide. Ce volume ne compte pas le volume des pores internes du matériau. La détermination du volume apparent de l'échantillon, ainsi que de sa surface d'échange avec l'environnement extérieur, nécessite le remplissage des vides. Pour remplir les vides internes, le bord extérieur doit être complètement fermé. Lorsque le bord est discontinu, le remplissage ne permet pas d'atteindre l'objectif visé. Avant de remplir le vide, il faut donc procéder à une opération de fermeture afin de fermer les bords et d'éliminer les petits trous (Figure 19e). La transformation de fermeture permet de déconnecter les gros pores internes, à éliminer par la suite, de l'environnement extérieur. Une fois l'opération de fermeture réalisée, une autre détermination de surface est appliquée sur l'image résultante, basée sur une option avancée qui supprime tous les vides (grands pores internes) (Figure 19f). La dernière opération est une transformation d'ouverture qui vise à adoucir les contours (Figure 19g). L'effet de cette opération n'est pas visible sur l'image, mais élimine une certaine rugosité du contour due aux seuillages. À partir de l'image finale complète, on peut déterminer le volume apparent et la surface d'échange. La détermination du volume et de la surface d'échange est basée respectivement sur les maillages de volume et de surface de la dernière image traitée (Figure 19g) créés par le logiciel VGSTUDIO. Les fractions de volume de gaz peuvent également être déterminées dans les échantillons, en soustrayant le volume réel de solide humide de la Figure 19d du volume apparent de boue de l'image complète de la Figure 19g.

Afin de déterminer la hauteur moyenne et le diamètre équivalent de l'échantillon, plus de 10 opérations de 'Bounding box' sont effectuées à différentes positions verticales (Figure 20). La valeur moyenne des hauteurs de ces 'Bounding boxes' est supposée être la hauteur moyenne de la boue.

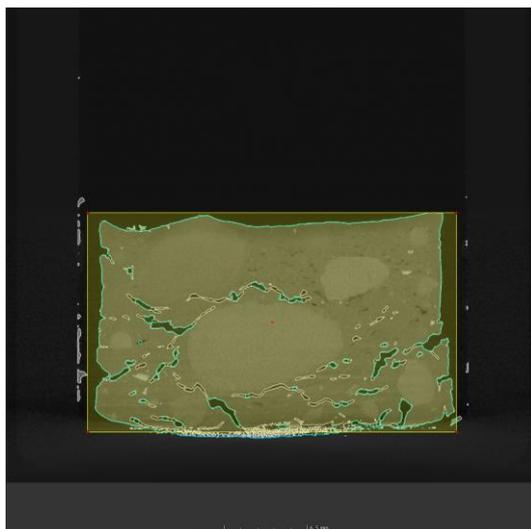


Figure 20 : Méthode de détermination de la hauteur moyenne par ‘Bounding box’.

Le diamètre équivalent de l'échantillon est ensuite déterminé sur la base de l'équation suivante :

$$d_{eq} = \sqrt{\frac{4 \times V_{bulk}}{\pi h_{ave}}} \quad (17)$$

Où  $d_{eq}$ ,  $h_{ave}$  et  $V_{bulk}$  sont respectivement le diamètre équivalent, la hauteur moyenne et le volume apparent de l'échantillon de boue testé.

- [1] Serra, J. Image Analysis and Mathematical Morphology; *Academic Press, Inc.*: USA, **1983**.
- [2] Najman, L.; Talbot, H. Introduction to Mathematical Morphology; *John Wiley & Sons, Inc.*: Hoboken, NJ, USA, **2013**; pp 1–33. <https://doi.org/10.1002/9781118600788.ch1>.
- [3] Leonard, A.; Blacher, S.; Marchot, P.; Pirard, J. P.; Crine, M. Image Analysis of X-Ray Microtomograms of Soft Materials during Convective Drying. *Journal of Microscopy*, **2003**, *212* (2), 197–204. <https://doi.org/10.1046/j.1365-2818.2003.01242.x>.
- [4] Li, J.; Plougonven, E.; Fraikin, L.; Salmon, T.; Toye, D.; Léonard, A. Image Analysis of X-Ray Tomograms of Sludge during Convective Drying in a Pilot-Scale Fixed Bed. *Chemical Engineering Science*, **2015**, *134*, 222–229. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.05.010>.
- [5] Léonard, A.; Blacher, S.; Marchot, P.; Pirard, J.-P.; Crine, M. Moisture Profiles Determination During Convective Drying Using X-Ray Microtomography. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, **2008**, *83* (1), 127–131. <https://doi.org/10.1002/cjce.5450830121>.
- [6] Tao, T.; Peng, X. F.; Lee, D. J. Skin Layer on Thermally Dried Sludge Cake. *Drying Technology*, **2006**, *24* (8), 1047–1052. <https://doi.org/10.1080/07373930600776258>.
- [7] Léonard, A. Étude Du Séchage Convectif De Boues De Station D'épuration - Suivi De La Texture Par Microtomographie À Rayons X, *Université De Liège*, **2002**.
- [8] Borges de Oliveira, F.; Stolfi, A.; Bartscher, M.; De Chiffre, L.; Neuschaefer-Rube, U. Experimental Investigation of Surface Determination Process on Multi-Material Components for Dimensional Computed Tomography. *Case Studies in Nondestructive Testing and Evaluation*, **2016**, *6*, 93–103. <https://doi.org/10.1016/j.csndt.2016.04.003>.
- [9] Tan, Y.; Kim, K.; Jean-Pierre, K.; André, V.; Wim, D. Material Dependent Thresholding for Dimensional X-Ray Computed Tomography; **2011**.
- [10] Lettenbauer, H.; Lotze, A.; Kunzmann, S. Method and Device for Identifying Material Boundaries of a Test Object. **2011**.

## Annexe B : Caractéristiques intrinsèques de la boue

Tableau 8 : Évolution de la conductivité thermique effective mesurée sur la boue A en fonction de la teneur en eau.

$X$ (kg eau. $\text{kg}^{-1}$ solide)	Conductivité thermique effective $K_{eff}$ ( $\text{W. m}^{-1}. \text{K}^{-1}$ )
0,00	1,71
0,09	1,718
0,23	1,72
0,30	1,73
0,30	1,73
0,41	1,78
0,50	1,82
0,64	1,945
0,80	2,06
0,82	1,97
0,90	2,06
0,97	2,07
1,00	2,05
1,10	2,08
1,20	2,13
1,24	2,15
1,38	2,27
1,60	2,53
1,65	2,43
1,80	2,47
1,90	2,46
2,10	2,6

Tableau 2 : Isotherme expérimental de désorption de l'eau de la boue A à 65 °C et à pression atmosphérique.

$a_w$ (-)	$100 \times X_e$ (kg eau. $\text{kg}^{-1}$ solide)
0,00	2,0
0,09	2,3
0,22	1,3
0,40	1,4
0,46	2,5
0,50	4,4
0,66	13,5
0,66	14,9
0,73	16,7
0,75	19,2
0,75	19,5
0,83	23,2
0,91	51,3

Tableau 3 : Évolution de la capacité calorifique (calculée selon l'équation de Laliberté) des boues A et B en fonction de la teneur en eau.

$X$ (kg eau. $\text{kg}^{-1}$ solide)	Capacité calorifique $C_p$ ( $\text{J. g}^{-1}. \text{K}^{-1}$ )
0,00	0,81
0,16	1,13
0,29	1,36
0,45	1,61
0,53	1,73
0,68	1,92
0,82	2,08
0,88	2,15
1,02	2,29
1,18	2,43
1,27	2,50
1,38	2,58
1,62	2,74
1,80	2,81
2,00	2,90
2,20	2,98
2,40	3,05
2,60	3,11
2,80	3,17
3,00	3,22
3,20	3,26
3,40	3,30
3,60	3,34
3,80	3,37

Tableau 4 : Évolution de la masse volumique apparente mesurée des boues A et B en fonction de la teneur en eau.

$X$ (kg eau. $\text{kg}^{-1}$ solide)	$\rho_{app}$ ( $\text{kg. m}^{-3}$ )
0,00	3280
0,02	3455
0,06	3403
0,24	3706
0,52	3272
0,72	2592
1,00	1681
1,20	1423
1,26	1492
1,46	1481
1,59	1336
2,10	1330
2,38	1279
3,05	1230
3,11	1203
3,46	1274
3,98	1202

Annexe C: Article scientifique soumis et en révision pour acceptation finale au journal « Environmental technology »

**Thermal and mass transfer properties of a shrinkable industrial sludge: experimental determination and modeling approach**

Experimental characterisation of shrinkable sludge, thermo-physical properties and drying kinetics

AL Ahmad Layth<sup>1,2</sup>, Latrille Christelle<sup>1</sup>, Hainos Delphine<sup>1</sup>, Blanc Denise<sup>3</sup>, Clause Marc<sup>2</sup>

*<sup>1</sup>Den-Service d'Etude du Comportement des Radionucléides, CEA, Université Paris-Saclay, F91191, Gif-sur-Yvette, France ; <sup>2</sup>Univ-Lyon, CNRS, INSA-Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1, CETHIL UMR5008, F-69621, Villeurbanne, France ; <sup>3</sup>Univ-Lyon, INSA-Lyon, DEEP EA7429, F-69621, Villeurbanne, France*

Corresponding author: Tel: +33 1 69 08 34 24. e-mail: [christelle.latrille@cea.fr](mailto:christelle.latrille@cea.fr)

## Nomenclature

A, B	Sorption model parameters	$x_0$	Distance to the surface (m)
a, b, $b_{cr}$	Shrinkage model parameters (-)	x	Axial coordinate (m)
A	Cylinder cross-section area (m <sup>2</sup> )	Greek symbols	
$a_w$	Water activity (-)	$\beta$	Shrinkage coefficient
$C_p$	Heat capacity (J.K <sup>-1</sup> .g <sup>-1</sup> )	$\rho$	Apparent density of the sludge (kg m <sup>-3</sup> )
$\Delta H_{vap}$	Latent heat of evaporation (J kg <sup>-1</sup> )	Subscripts	
$D_0$	Initial apparent moisture diffusivity (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	0	Initial
$D_{app}$	Apparent moisture diffusivity (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	cal	Calculated
$K_{eff}$	Effective thermal conductivity (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	cr	Critical
L	Thickness (m)	d	Dry
m	Mass (kg)	e	Equilibrium
$\dot{m}$	Evaporation flux	end	End of the experiment
Q	Heat flow (W)	exp	Experimental
R	Gas constant (J.K <sup>-1</sup> .mol <sup>-1</sup> )	f	Final
$R^2$	Coefficient of determination (-)	oil	Oil
RMSE	Root mean square error (-)	tot	Total
T	Temperature (K)	w	Water
t	Time (s)		
V	Volume (m <sup>3</sup> )		
X	Water content (-)		

## Abstract

Nuclear energy production generates radioactive sludge, which has to be stabilized and confined for a safety storage. For this purpose, the sludge have to be dried to ensure its physical integrity and its chemical stability. So it is essential to provide elements to predict the physical behaviour of sludge and the water distribution through the sludge during drying process. In this study the thermo-physical and mechanical properties of an industrial sludge like shrinkage coefficient, density, water activity, apparent moisture diffusivity, effective thermal conductivity and heat capacity are determined experimentally. The sludge shrinks linearly until reaching a critical water content  $X_{cr}=23\%$  and then maintains a constant volume until the end of drying. Therefore, the density increases with decreasing the water content until the critical value ( $X_{cr}=23\%$ ) then it decreases until the end of drying. Four statistical models are used for modelling the experimental data of water sorption. The Henderson model seems to be the most appropriate to describe the water sorption isotherm of the sludge. The apparent moisture diffusivity is determined from the numerical solution of Richard's law of diffusion with shrinkage. The results show that the effective thermal conductivity and the heat capacity decrease with the reduction of the water content from  $2.60 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  and  $2.52 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a wet sludge to  $1.71 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  and  $0.78 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a dry sludge respectively. The relationships between thermo-physical / mechanical properties and the water content / temperature of the sludge are established.

Keywords: drying, shrinkage, density, thermo-physical properties, sludge.

## 1. Introduction

Nuclear energy production generates radioactive wastewater, which must be purified from radioactive substances to limit wastewater volumes. The selected nuclear wastewater treatment is based on the co-precipitation of radioelements with mineral salts [1]. This process generates a wet solid phase or sludge, which has to be stabilized and confined for a safety storage. For this purpose, the sludge have to be dried before its transport and storage phase to ensure its physical integrity and its chemical stability. At first simplified sight, the water removal process consists of sludge drying in a temperature-controlled environment at 65 °C under partial vacuum.

In this context, it is essential to provide elements to define the drying time beyond which the final drying target will be reached throughout the container. To predict the physical behaviour of sludge and the water distribution through the sludge during water removal, a numerical model will be developed by including the intrinsic thermo-physical and mechanical properties of the sludge. During drying, the temperature and the water content evolve continuously as a result of heat and mass transfer mechanisms which occur simultaneously in the porous medium of the sludge, as well as shrinkage [2–6], dependent of moisture. To describe accurately the drying process, mass and heat transfer mechanisms should be studied simultaneously by resolving their appropriate equations at the same time. Water transfer during sludge drying could be expressed mathematically by the Richards' equation that describes the liquid transfer in a partially saturated porous medium (Eq. 1) [7]:

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \nabla \left( \left( \frac{D_{app}}{\left(1 + \beta \frac{X}{X_0}\right)^2} \right) \nabla(X) \right) \quad (1)$$

Heat transfer is represented mathematically by the Fourier's law of conduction due to the conductive drying method (Eq.2):

$$(\rho c_p)_{eff} \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (K_{eff} \nabla T) - \dot{m} \Delta H_{vap} \quad (2)$$

A preliminary characterization study of sludge is then necessary to acquire the input data of the numerical model that governs these coupled mechanisms. Besides, the thermo-physical / mechanical properties of this specific industrial sludge have not been studied yet. Therefore, an experimental database of these sludge properties is required in order to model the sludge drying. Water activity is a key parameter in the drying process of a porous medium. Water activity is the major contributor to the water evaporation rate [8]. Unlike pure water, water activity of a wet porous medium such as sludge, depends on its water content and salt composition [9]. Water activity depends on the microscopic interactions between the water and solid phases of the porous medium. Therefore, it is crucial to determine its evolution as function of water content. Moreover, the water transfer mechanisms need to be studied in order to describe accurately the drying process. Complex water transfer mechanisms occur simultaneously during drying, such as diffusion/capillarity (liquid water) and molecular/Knudsen diffusion (water vapour). Due to the complexity of the problem, an apparent moisture diffusivity is determined based on the Richard's equation (Eq. 1) [7, 10]. The equation 1 was successfully applied to determine the apparent moisture diffusivity by simulating experimental kinetics data acquired on various materials exposed at different drying conditions [11–15]. This diffusivity combines all the water transport mechanisms in one coefficient. Nevertheless, the apparent moisture diffusivity depends on water content and temperature of the porous medium [4, 16]. However, many studies reported that wet porous medium is subjected to volume reduction due to water evaporation during drying [17]. It results in changes in particles adhesion and viscoelastic behaviour [18]. As a result, moisture diffusivities are significantly affected by shrinkage [12, 19]. Indeed, moisture diffusivity depends on the path length of the displaced water evolving with shrinkage. Hence, the shrinkage phenomenon has to be taken into account while determining the apparent moisture diffusivity. Therefore, it is crucial to study the

shrinkage phenomenon, especially since it affects the apparent diffusion coefficient and has an influence on the drying rate.

On the other hand, thermal properties have to be determined as function of water content and temperature. Indeed, many studies have shown that the effective thermal properties of a wet porous medium vary during drying, following the evolution of its volume fractions (gas, liquid, and solid phases) and the temperature [20–22].

Thus, the objective of this work is to determine the apparent moisture diffusivity, shrinkage phenomena, apparent density, water activity, effective thermal conductivity and heat capacity, as function of water content and temperature. In this study, drying kinetics at different temperatures and relative humidity lead to determine the water sorption isotherms and the apparent moisture diffusivity. Apparent moisture diffusivity is determined numerically based on the inverse problem method for solving the Richard's equation taking into account the shrinkage. For this purpose, the sludge shrinkage phenomena is independently determined by experimental volume loss.

## 2. Material and Methods

### 2.1. Material

In sake of experimental security, nuclear sludge is substituted by a non-radioactive sludge (SEPA), synthesized using the same protocol and having similar chemical composition. The SEPA sludge is synthesized by salt co-precipitation, and its composition is reported in Table 1. The sludge is initially formed of a solid phase (insoluble salts) mixed within a liquid phase (water and soluble salts). The initial water content is 210 % (kg water kg<sup>-1</sup> dry basis). The main batch of sludge is stored in a sealed container to prevent loss of water during the characterization study period.

Table 1: Composition of the sludge (SEPA) on wet basis

	Component	% in mass wet basis
Insoluble salts	Ti(OH) <sub>4</sub>	4.3
	Fe,Ni(CN) <sub>6</sub> K <sub>4</sub>	5.9
	BaSO <sub>4</sub>	45.5
	CoS	7.9
	Flocculent	0.1
Soluble salts	NaNO <sub>3</sub>	27.2
	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	9.1
TOTAL		100

## 2.2. Shrinkage phenomenon and apparent density

The selected experimental method to determine the shrinkage coefficient consists in filling the reduction of the sludge volume by immiscible oil. After drying, the sludge is weighed and an amount of edible oil ( $\rho_{oil} = 0.933 \text{ g.cm}^{-3}$ ) is added up to fill the initial volume. The added volume  $V_{oil}$  is determined based on mass difference. The sludge volume after drying is determined as shown in Eq. 3:

$$V_f = V_0 - V_{oil} \quad (3)$$

For this purpose, more than twenty samples of sludge are dried at 65 °C, 46 % of relative humidity and 200/ 1000 mbar absolute pressure for different time spans to obtain samples having different water contents and volumes. The water contents of the samples are determined based on the kinetics data acquired at the same operating conditions.

Therefore, knowing the volume filled by the sludge, apparent density is determined for the samples at different water contents. The apparent density is defined by the ratio of the total mass of the sludge over its total volume.

## 2.3. Experimental drying kinetics

### 2.3.1. Experimental devices and operating conditions

An experimental device is set up to access the mass loss of a sludge sample (SEPA) over time under controlled and constant temperature / relative humidity conditions until equilibrium is

reached. Each 30g sample is suspended from an analytical balance (AG204, Mettler Toledo, Inc., Hightstown, NJ) and confined in a desiccator with relative humidity imposed by a saturated saline solution. This desiccator is placed in an oven at a constant temperature  $T$  and atmospheric pressure. The mass measured by the balance is continuously recorded (figure 1). A sensor is placed inside the desiccator to record temperature and relative humidity variations. More than fifteen samples are dried with different salt solutions (relative humidity) at  $65\text{ }^{\circ}\text{C}$  and 1000 mbar (LiCl,  $\text{MgCl}_2$ ,  $\text{K}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ , SrCl,  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , NaCl, KI,  $\text{NaNO}_3$  and KCl). These salts permit to cover a wide range of relative humidity from 20 to 95 % as reported by many authors [23].

Drying is stopped when sludge reaches equilibrium moisture content  $X_e$  and the change in weight is lower than 0.01 g during hours. Once equilibrium is reached, the sample is removed from the desiccator, weighted and then exposed to nitrogen for 2 weeks in order to determine its dry mass  $m_d$ . The equilibrium water content for each sample is then determined using Eq. 4.

$$X_e = \frac{m_e - m_d}{m_d} \quad (4)$$

In order to determine the apparent moisture diffusion coefficient  $D_{\text{app}}(X, T)$ , that depends on water content and temperature of the sludge, four drying kinetics are acquired under constant relative humidity (46%) at 45, 50, 55 and  $65\text{ }^{\circ}\text{C}$  using the same experimental setup (figure 1).

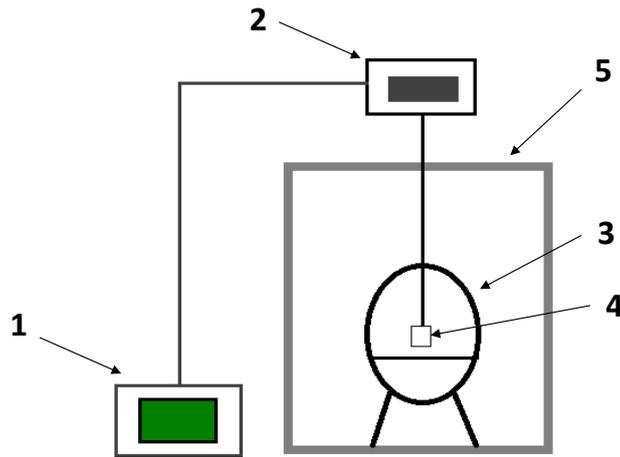


Figure 1: Experimental setup for sludge drying kinetics. (1) Control panel; (2) Digital balance; (3) Glass desiccator; (4) Sample holder; (5) Drying oven

To determine the evolution of the water content  $X$  over time based on the sample total mass  $m_{tot}$ , the dry mass  $m_d$  is determined in advance. The water content is then calculated, referring to the dry mass using Eq. 5:

$$X = \frac{m_w}{m_d} = \frac{m_{tot} - m_d}{m_d} \quad (5)$$

The drying rate of the sludge ( $dX/dt$ ) is then estimated based on the difference in water content  $X$  over time. Once the kinetics data is established, the apparent moisture diffusivity is determined numerically.

### 2.3.2. Water sorption isotherms

Four widely used empirical equations [24–26] are proposed to model the water desorption isotherm of the studied sludge (SEPA) at constant temperature (65°C) (Table ). The suitable model is chosen based on the best adjustment of equations on the water desorption isotherm, criticised by the determination coefficient ( $R^2$ ) and the root mean square error (RMSE).

Table 2: Applied empirical equations to model the water sorption isotherms

Model Name	Expression of the model
------------	-------------------------

Oswin	$X_e = A \left( \frac{a_w}{1 - a_w} \right)^B$
Halsey	$X_e = \left( \frac{A}{-\ln(a_w)} \right)^B$
Henderson	$X_e = \left( \frac{-\ln(1 - a_w)}{A} \right)^B$
Peleg	$X_e = A a_w^B$

Where A and B are empirical constants to be determined by adjustment of equations on experimental data.

### 2.3.3. Apparent moisture diffusivity

In order to determine the apparent moisture diffusivity, a numerical code is created to resolve the mass transfer equation based on the inverse problem method. A cylindrical geometry is assumed to describe the sludge sample while moisture transfer and shrinkage occur only in cylinder axis direction. The main assumptions made in the proposed model (Eq. 1) are:

- The initial moisture distribution inside sludge is uniform.
- The sludge is assumed isothermal due to the small size of the sample. So the temperature inside the sludge is supposed uniform and equal to the external temperature.
- The water content distribution in the sludge is not uniform over time. Thus, the sludge is considered as a mesh of finite elements, each having local apparent moisture diffusivity depending on its local water content and the temperature.
- Moisture transfer and shrinkage occur only in 1D (in cylinder axis direction).
- The variation of the water content over time is experimentally accessible from the sludge drying kinetics (2.3.1).

The initial conditions used are as follow:

$$t = 0 \quad 0 \leq x < x_0 \quad X = X_0 \quad (6.a)$$

$$t = 0 \quad x = x_0 \quad X = X_e \quad (6.b)$$

The boundary conditions used are as follow:

$$t > 0 \quad x = 0 \quad \frac{\partial X}{\partial x} = 0 \quad (6.c)$$

The numerical solution of the proposed model (Eq. 1) is based on the control volume spatial discretisation with implicit time integration developed by Robert D. Skeel [27]. The

optimization of the solution is done by minimizing the difference between the experimental drying curve and the simulated one. First, an initial value of the moisture diffusivity  $D_0 = 10^{-8}$  m<sup>2</sup>/s is defined from literature [4, 16, 28]. As indicated in the flowchart (figure 2), the resolution starts with the initial water content  $X_0$  and the initial moisture diffusivity  $D_0$ . Then, the code determines the local water contents of all the finite elements and their average  $X_{cal}$  after one time step. Afterwards, the calculated value  $X_{cal}$  is compared with the experimental water content  $X_{exp}$  at the same time step. The agreement criterion was  $|X_{cal} - X_{exp}| < 10^{-3}$ . If the criterion is satisfied, the results are stored. Else, new moisture diffusivity is then applied depending on the obtained simulated value  $X_{cal}$ : when  $X_{cal} - X_{exp} > 0$ , the value  $1.005D_0$  is used, when  $X_{cal} - X_{exp} < 0$  the value  $0.995D_0$  is used. This loop is repeated until the criterion is fulfilled. The last value of the moisture diffusivity is stored and then used as the initial value of the moisture diffusivity  $D_0$  for the next calculation step. The calculations are continued, by time incrementation ( $t++$ ), until the end of the experimental drying kinetic data when time  $t_{end}$  is reached.

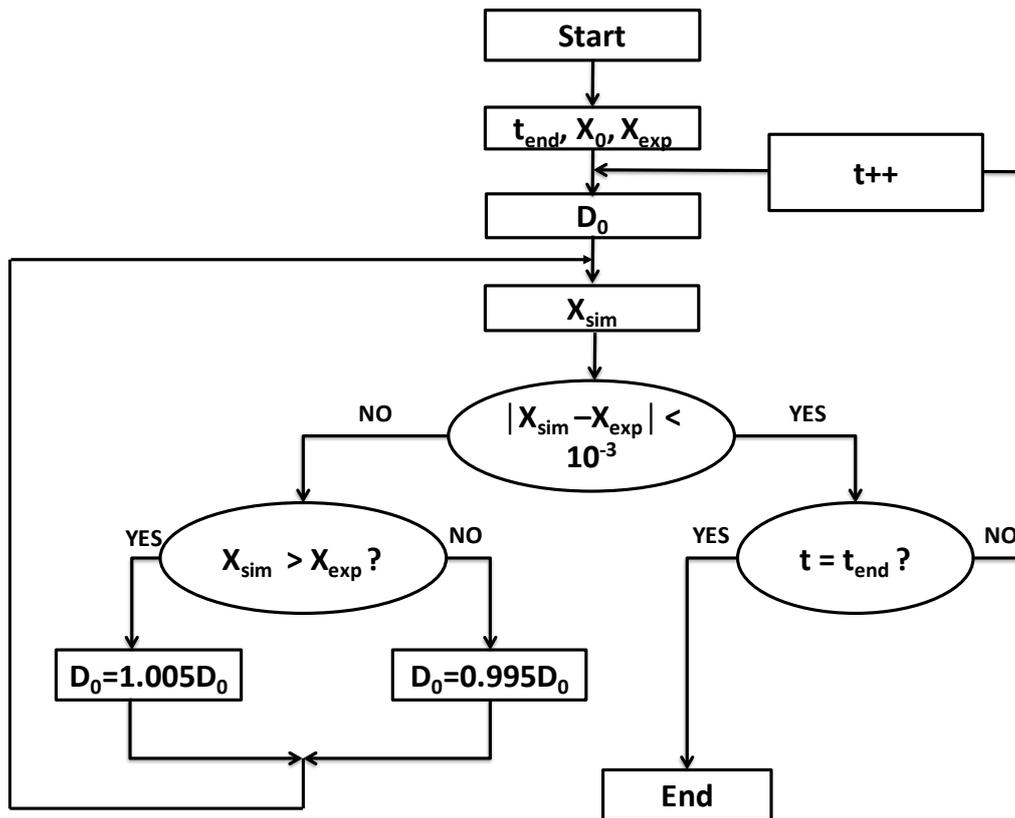


Figure 2: Flowchart of the apparent moisture diffusivity determination's code, based on the experimental drying kinetics

## 2.4. Thermal properties

Thermal properties like thermal conductivity and heat capacity are required in order to study the heat transfer inside the sludge during drying. Therefore, these parameters are determined in the same range of temperature conducted in the selected drying process: between the initial temperature of the sludge 25 °C and the external temperature 65 °C. Guo et al.[29] and Kohout et al.[20] showed that thermal conductivity and heat capacity of a wet porous medium depend on the thermal properties of its components (gas, liquid, and solid phases), their volume fractions and the temperature. They also evidenced that the variation of these parameters could only be related to the variation of the water content in a narrow range of temperature.

### 2.2.1. Effective thermal conductivity

It is necessary to determine the effective thermal conductivity as the 3 phases (gas, liquid and

solid) coexist in the sludge [20]. In order to determine the effective thermal conductivity of the sludge as a function of water content, the guarded hot plate method is chosen [30]. As experimental setup, a cylindrical thermal cell is designed with an internal radius of 2 cm, a height of 10 cm and two copper covers of 2 mm thick closing the bottom and the top (figure 3). The lateral surface is thermally insulated so that the heat flux diffuses theoretically in 1D. The thermal cell is placed on a heat source (hotplate) with a constant surface temperature of 65 °C. Four Pt100 sensors are located along the vertical axis of the cell to measure continuously the temperature in the sludge.

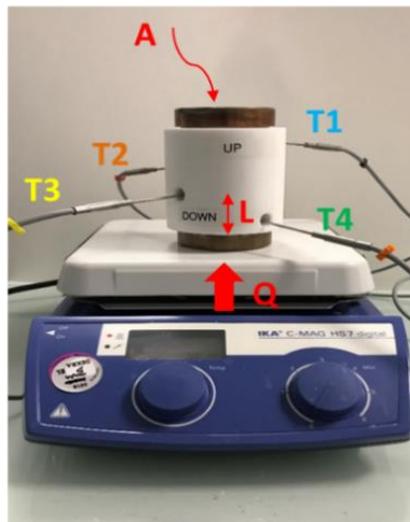


Figure 3: Experimental setup of the guarded hot plate method for effective heat conductivity determination (T1, T2, T3 and T4 are Pt100 temperature sensors)

The heat flux delivered at the contact surface of the thermal cell with the hotplate is determined previously on sand by measurements performed in the same conditions. The sand thermal conductivity being referred by Fang et al. [31], the heat flux for this device is then deduced from these measurements. More than twenty tests are carried out on partially dehydrated sludge to achieve a range of water content from 210 to 0 %. The effective thermal conductivity is determined from the Fourier's law of heat conduction (Eq. 2) in a 1D stationary regime that becomes as follows [32]:

$$K_{eff} = \frac{QL}{A \Delta T} \quad (7)$$

### 2.2.2. Heat capacity

Differential scanning calorimetry (DSC) method is used to determine the heat capacity of the sludge [33]. It is based on differential measurement of the heat flow of the sample pan compared to the heat flow of an empty pan reference. The calorimeter is a DSC 111 manufactured by Setaram, coupled with a liquid nitrogen cooling system. More than fifteen samples of  $0.135 \pm 0.005$  g each are tested with water contents between 210 and 0 %.

Each sample is loaded in a sealed glass pan. These sealed pans are designed to avoid water evaporation from the sludge during the thermal cycle of the DSC. To control a potential water loss, pans mass is measured before and after the thermal cycle. The measurement of the heat flow is made differentially, where the heat flows of the sample and an empty reference pan are compared. The heating ramp is carried out in order to create a thermal cycle to measure the heat capacity of the sludge at different temperatures. To conduct the thermal cycle, a heating rate of  $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$  is applied between  $35^{\circ}\text{C}$  and  $70^{\circ}\text{C}$  under inert argon atmosphere (Ar). About 7 hours are necessary to complete each sample measurement. The reference sample values are subtracted from the raw values and then calibrated using CALISTO software. Calibration is done based on the DSC signal of Sapphire samples.

## 3. Results and Discussion

### 3.1. Shrinkage phenomenon

Structural modifications may occur during sludge drying, affecting the mass transfer inside the material. This includes shrinkage, resulting from the volume reduction of the heated wet material due to water evaporation [2, 34]. When water is removed, pressure imbalance occurs between the inside of the material and the external atmosphere. This generates contraction

stresses that result in shrinkage and occasional cracking of the material [35]. Furthermore, shrinkage affects the heat and mass transfer area as well as moisture diffusivity [17, 18]. Consequently, the drying kinetics and the whole drying process are affected. Hence, it is necessary to quantify the shrinkage phenomenon for shrinkable material and to take it into account while modelling the transfer mechanisms [2, 19, 28, 36, 37]. The volumes ratios versus the specific water content of the sludge aliquots dried at 65 °C under atmospheric pressure and HR = 46 % are displayed in figure 4.

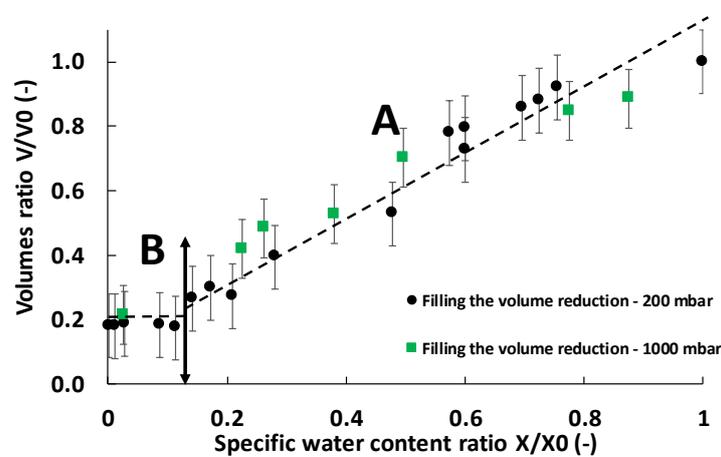


Figure 4: Volumes ratio versus specific water content of the sludge

It is clearly visible that the volumes ratio results acquired at 200 mbar follow the same trend of that acquired at atmospheric pressure. This confirms that the overall shrinkage phenomenon is not affected by the operating conditions of the drying process. According to Ketelaars et al. [38], the evolution of the volume ratio is divided into two main parts A and B. Firstly, the sludge shrinks linearly (A) with water reduction from  $X/X_0=1$  ( $X=210\%$ ) to its critical specific water content  $X_{cr}/X_0 = 0.11$ , initially from  $V/V_0 = 1$  to  $V/V_0 = 0.22$  with a slope  $a_1 = 1$  (Eq.8). Finally, after reaching  $X_{cr}/X_0 = 0.11$ , the sludge maintains a constant volume ratio  $V/V_0 = 0.22$  until the end of drying despite water evaporation (B). So the critical specific water content  $X_{cr}/X_0 = 0.11$  corresponding to a critical water content  $X_{cr} = 23\%$  is the limit of shrinkage, where the solid particles become very tight to each other and they cannot get closer.

$$\frac{v}{v_0} = \begin{cases} (A) : \frac{X}{X_0} + 0.11 = 0.11(1 + 9.1 \frac{X}{X_0}) & 0.11 < \frac{X}{X_0} < 1 \\ (B) : 0.22 & \frac{X}{X_0} \leq 0.11 \end{cases} \quad (8)$$

So the shrinkage coefficient of the first part (A) is  $\beta = 9.1$  with a correlation coefficient  $R^2 = 0.96$ . Then it becomes  $\beta = 0$  when there is no longer any shrinkage under  $X/X_0 = 0.11$  in the part (B).

### 3.2. Apparent density

The evolution of the sludge apparent density is presented in figure 5.

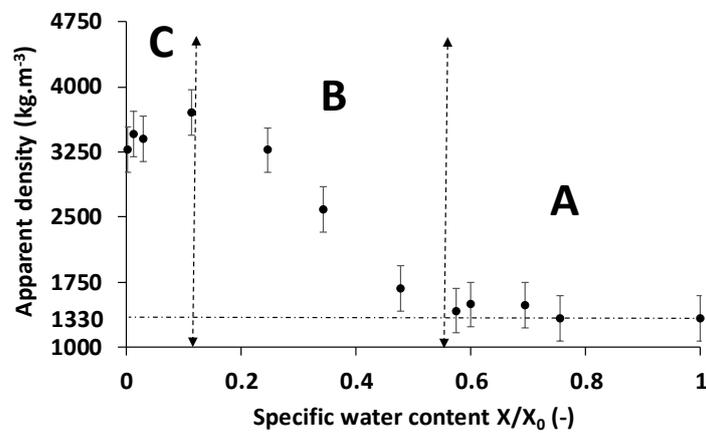


Figure 5: Experimental evolution of the sludge apparent density versus specific water content

The apparent density depends on two factors, the mass and the volume of the sludge. The apparent density at the initial specific water content ( $X/X_0=1$ ) is  $1330 \text{ kg.m}^{-3}$ . In part (A), at highest water content, the water loss is extremely large that leads to an enormous volume reduction. However, the density keeps almost constant with water reduction until  $X/X_0=0.57$ . Then the density increases in part (B) with water content reduction due to the mitigation of the water loss always accompanied with enormous volume reduction. Therefore, the apparent density increases up to  $3700 \text{ kg.m}^{-3}$  at the critical specific water content  $X_{cr}/X_0=0.11$  ( $X_{cr}=23\%$ ). Then the density decreases in part (C) with the reduction of the water content downward to  $3400 \text{ kg.m}^{-3}$  for dry sludge. This decrease is due to the end of the sludge shrinkage,

always accompanied with tiny water loss below  $X_{cr}/X_0=0.11$ .

### 3.3. Water sorption isotherms

Water activity is characteristic of the microscopic interactions between the water phase and the solid phase in a wet porous medium [37]. The water sorption isotherms inform on the intensity of water bonds and moisture equilibrium content [39]. They provide precision on the water transport and its removal during drying [40]. As reported in the literature [23, 41, 42], water sorption isotherm can be determined using static or dynamic methods. In both methods, the equilibrium phase has to be reached to determine the water content of the sample at equilibrium with a relative humidity, and finally to access at the sorption isotherm [43]. Based on experimental drying kinetics, the thermodynamic equilibrium of each sludge sample is reached after 1 to 3 weeks of drying, depending on the relative humidity of the medium. At the equilibrium stage, water activity  $a_w$  of the sample is equal to the relative humidity of the surrounding environment. As shown in figure Figure 6, the equilibrium water contents decrease with the decrease in water activity. The sorption isotherm curve has a sigmoid shape of type II in the IUPAC classification for adsorption isotherms [44]. Thus, the studied sludge (SEPA) is a macro-porous medium. The curve tends towards a vertical asymptote ( $a_w = 1$ ) with the water content increase. Indeed, when the water content is high, the pores are filled with free water, which imposes a water activity value equal to one.

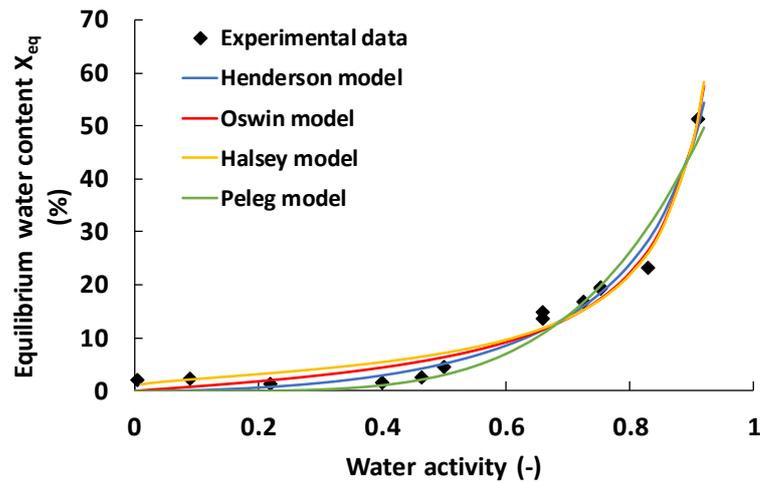


Figure 6: Sludge (SEPA) water desorption isotherm at 65 °C: experimental data (dark diamonds) and fitted data (full lines)

Table 2 compiles the values of statistical parameters (coefficient of determination  $R^2$  and root mean square error, RMSE) which qualify the adjustment of the four models on the sludge desorption isotherm. Henderson's model is found to be the most appropriate to describe the desorption isotherm of the studied sludge (SEPA), with highest  $R^2 = 97.5\%$  and lowest  $RMSE = 2.31\%$ .

Table 2: Estimation of coefficients A and B and statistical parameters for the four models fitted on sludge desorption isotherms at 65 °C

Model	A	B	$R^2\%$	RMSE%
Oswin	6.396	0.900	97.2	2.47
Halsey	4.542	1.019	96.4	2.78
Henderson	0.282	1.823	97.5	2.31
Peleg	72.72	4.566	94.9	3.16

$$R^2 = 1 - \frac{\sum(X_{eq,pre} - X_{eq,exp})^2}{\sum(X_{eq,pre} - \bar{X}_{eq,exp})^2} \text{ and } RMSE = \left( \frac{\sum(X_{eq,pre} - X_{eq,exp})^2}{N} \right)^{1/2}$$

### 3.4. Apparent moisture diffusivity

The sludge drying curves are expressed by the specific water content of the sludge ( $X/X_0$ ) as a function of drying time. The drying curve acquired at 45, 55 and 65 °C are divided into two distinct parts as shown in figure 7.a. The specific water content decreases rapidly and then slowly reduces as drying processes. Initially, a rapid reduction in specific water content occurs until a value of  $X/X_0 = 0.07$  after 67, 44 and 42 h of drying for 45, 55 and 65 °C respectively.

Beyond this value, the specific water content decreases slightly until reaching the equilibrium ( $X_e/X_0 = 0.02$  corresponding to a water content  $X_e = 4\%$ ) after 160, 149 and 80 h, respectively at 45, 55 and 65 °C. The steepest curve corresponds to the highest temperature value (65 °C). Figure 7.b confirms this trend by showing that the specific drying rates (slopes of the drying curves in figure 7.a) increase with temperature. They reach a maximum of  $5.0 \times 10^{-6}$ ,  $20.8 \times 10^{-6}$  and  $21.0 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ , respectively for 45, 55 and 65 °C. This confirms that the higher the temperature gets, the higher the drying rates and the faster the drying would be. So we can state that temperature is a determining factor in the evaporation of water during sludge drying [2].

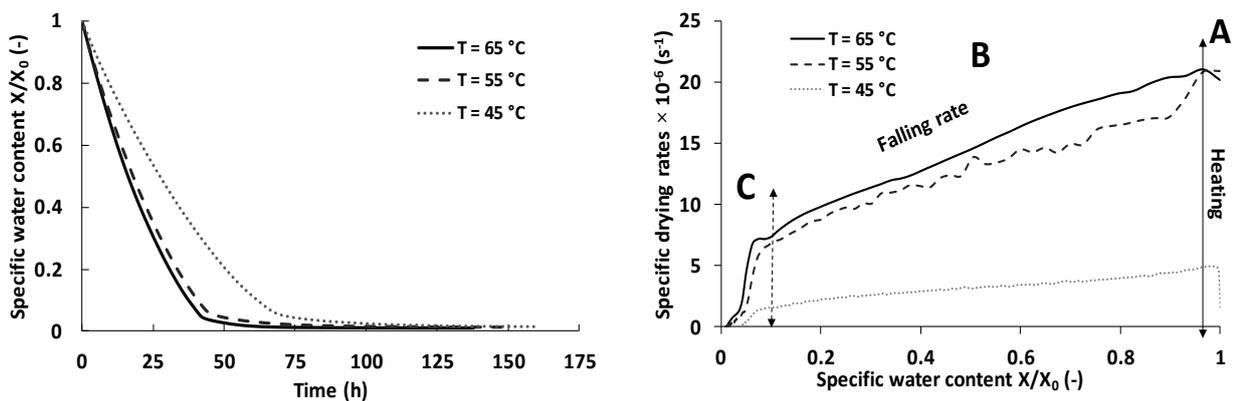


Figure 7: (a) Drying kinetics versus time and (b) specific drying rates versus specific water content of the sludge recorded at 45, 55 and 65 °C, under atmospheric pressure and RH=46 %

Moreover, each drying rates curve (figure 7.b) is divided into two steps, exhibiting a heating up and falling rate [45]. The first step (A) corresponds to sludge heating; it takes place at the beginning of drying for a short time. Then, the falling rate step (B, C) starts when there is a decrease in the drying rate. The latter corresponds to the stage when internal resistances of heat and mass transfer are the limiting phase of the kinetics. The falling rate stage is divided into two periods (B) and (C). The first period (B) begins when all the free water of the external

surface is removed. The drying front that was on this surface, penetrates inside the material while removing the remaining free water [46]. Once there is only bound water, the second period of deceleration (C) begins at  $X/X_0=0.08$ . The drying is completed when the solid reaches its equilibrium water content under the considered operating conditions. As expected, the water content is a driving force for the evaporation of water during sludge drying.

The kinetics data obtained at 45, 55 and 65 °C are used to numerically determine the apparent moisture diffusivity. Kinetics data at 50 °C are used to validate the modelling approach to solve the Richards' equation. The evolution of the apparent moisture diffusivity as a function of specific water content for different temperatures (45, 55 and 65 °C) is presented in figure 8. Apparent moisture diffusivity increases with water content reduction. According to several works [47, 48], the increase in moisture diffusivity with water reduction is due to the dominance of the vapour diffusion on the liquid diffusion. Since apparent moisture diffusivity is the sum of diffusivities in vapour and liquid phases, and since vapour diffusion coefficient increases with moisture reduction, hence the increase of the apparent moisture diffusion coefficient with moisture reduction. Moreover, from  $X_{cr}/X_0$ , the abrupt increase of the apparent moisture diffusion coefficient coincides with the attainment of the sludge constant volume. At this stage, the solid particles are joined and delimit a complex porous network. Consequently, the water pathway through the sludge becomes more complex that is expressed in the apparent moisture diffusivity coefficient. Moreover, apparent moisture diffusivities increase markedly with temperature according to the Arrhenius equation.

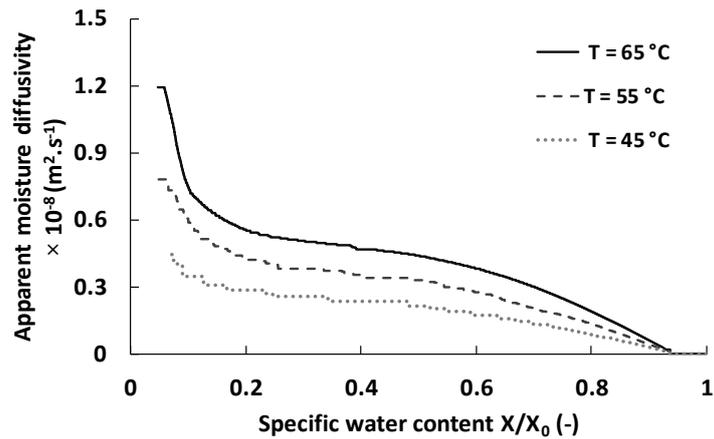


Figure 8: Numerically estimated apparent moisture diffusivity versus specific water content at 45, 55 and 65 °C

The values of the apparent moisture diffusivity are fitted with the following equation (Eq. 9):

$$D_{app}(X, T) = 10^{-8} \left( (8888 - 8237 \frac{X}{X_0} + 31220) \exp\left(-31 \frac{X}{X_0}\right) \right) \times \exp\left(\frac{-26547}{RT}\right) \quad (9)$$

This equation describes the evolution of the apparent moisture diffusivity with water content and temperature of the studied sludge. It is in good agreement with the experimental data ( $R^2 = 0.97$  and  $RMSE = 0.04$ ) as reported by similar models [4]. In order to validate the numerical approach, apparent moisture diffusivity at 50 °C is calculated as function of water content using the equation 9. The resulting values are introduced in Richards' equation to simulate the drying kinetics at 50 °C. Finally, simulations are compared to the experimental data at the same operating conditions. The results in figure 9 show a good agreement between simulations results and experimental data ( $RMSE = 0.04$ ) and validate this numerical approach.

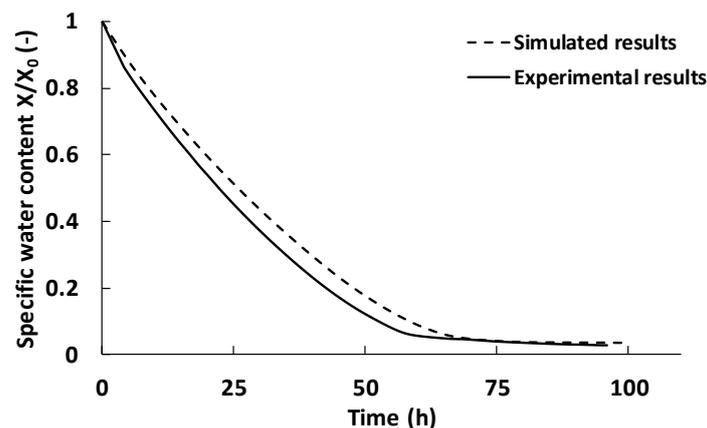


Figure 9: Simulated and experimental results of drying kinetics at 50 °C, 1 atm and HR=46%

### 3.5. Thermal properties

Experimental results acquired between 35°C and 70°C, showed that the effective thermal conductivity, as well as the heat capacity, do not depend on the temperature. The measurements

made on the sludge (SEPA) indicate that its effective thermal conductivity decreases linearly with the reduction of its water content from  $2.60 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a wet sludge with initial water content of 210 % to  $1.71 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a dry sludge (figure 10).

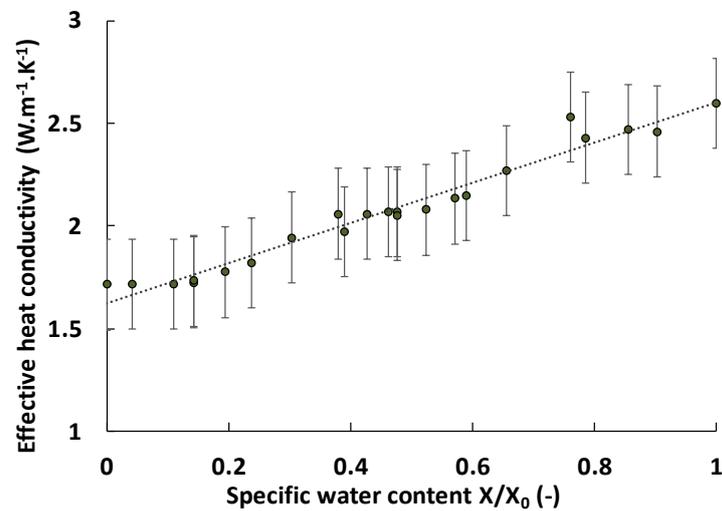


Figure 10: Evolution of the sludge effective thermal conductivity versus specific water content at  $65 \text{ }^\circ\text{C}$

The heat capacity of the sludge decreases exponentially with the reduction of water content from  $2.52 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a wet sludge to  $0.78 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a dry sludge (figure 11).

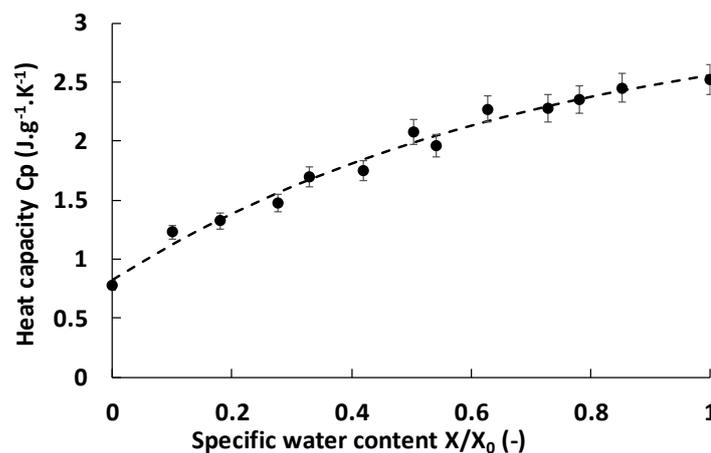


Figure 11: Evolution of the sludge heat capacity versus specific water content at  $65 \text{ }^\circ\text{C}$

The evolution of the heat capacity does not follow a linear decrease with the water content as it could be expected. According to previous works [49], this nonlinear unideal behaviour can be

explained by the reduction of water content combined with the increase of the salts concentrations in the solution. Since salt solutions have a  $C_p$  lower than pure water, it seems that the exponential decrease of the heat capacity of the sludge takes into account both physical and chemical phenomena.

This decrease in thermal properties during sludge drying is mainly due to the evaporation of water and its replacement by air having lower thermal properties. The relationships between the studied thermal properties and water content of the sludge are established as follow:

$$K_{eff} = 0.98 \frac{X}{X_0} + 1.62 \quad \text{with } R^2 = 0.96 \quad (10)$$

$$C_p = -2.66 \exp(-0.81 \frac{X}{X_0}) + 3.46 \quad \text{with } R^2 = 0.98 \quad (11)$$

## 4. Conclusion

In this work, the evolutions of main thermo-physical properties as well as the shrinkage of the sludge are studied during its drying. The sludge shrinks linearly until reaching a critical water content  $X_{cr} = 23 \%$  and then maintained a constant volume until the end of drying. The Henderson's model seems to be the most appropriate to describe the sludge water sorption isotherm. A numerical model devoted to solve the Richard's equation has been validated on experimental data. It results that the apparent moisture diffusivity, determined numerically from experimental drying kinetics, increases with water reduction and temperature. The effective thermal conductivity decreases linearly from  $2.60 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for wet sludge ( $X= 210 \%$ ) to  $1.71 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for dry sludge. The heat capacity decreases exponentially due to water reduction and salt precipitation from  $2.52 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for a wet sludge to  $0.78 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$  for dry sludge.

The next step will consist in developing a lab-scale experimental device to study the sludge behaviour during drying at various operating conditions. Furthermore, a numerical

model will be developed and validated to help with phenomena understanding and to run parametric studies.

## Acknowledgments

The authors thank CEA and Orano group for funding this research. Stephan Urvoy is acknowledged for his helpful DSC technical support.

## References

- [1] BG Aval / DMDR - AREVA. Rapport d'avancement Sur La Gestion Des Dechets Radioactifs MAVL d'AREVA. 2015.
- [2] Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Léonard, A. Modeling and Simulation of Heat and Mass Transfer during Convective Drying of Wastewater Sludge with Introduction of Shrinkage Phenomena. *Drying Technology*, **2014**, *32* (1), 13–22. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.807281>.
- [3] Hassine, N. B.; Chesneau, X.; Laatar, A. H. Numerical Modeling of Heat and Mass Transfers under Solar Drying of Sewage Sludge. *Numerical Analysis of the Sludge Drying Behaviors with Bottom Periodic Heating*, **2012**, *49* (4), 327–348. <https://doi.org/10.1615/HeatTransRes.2018017977>.
- [4] Louarn, S.; Ploteau, J.; Glouannec, P.; Noel, H. Experimental and Numerical Study of Flat Plate Sludge Drying at Low Temperature by Convection and Direct Conduction. *Drying Technology*, **2014**, *32* (14), 1664–1674. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.916299>.
- [5] Wu, D.; Peng, X.; Su, A.; Mujumdar, A.; Hsu, C.; Lee, D. Heat and Mass Transfer in Unsaturated Porous Cake with Heated Walls. *Drying Technology*, **2008**, *26* (8), 1079–1085. <https://doi.org/10.1080/07373930802179491>.
- [6] Wu, Z. G.; Cui, P. Y.; Tao, W. Q. Numerical Analysis of the Sludge Drying Behaviors with Bottom Periodic Heating. *Advanced Materials Research*, **2012**, *518–523*, 1761–1766. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.518-523.1761>.
- [7] Thuwapanichayanan, R.; Prachayawarakorn, S.; Soponronnarit, S. Modeling of Diffusion with Shrinkage and Quality Investigation of Banana Foam Mat Drying. *Drying Technology*, **2008**, *26* (11), 1326–1333. <https://doi.org/10.1080/07373930802330979>.
- [8] Rahimi Borujerdi, P.; Shotorban, B.; Mahalingam, S.; Weise, D. R. Modeling of Water Evaporation from a Shrinking Moist Biomass Slab Subject to Heating: Arrhenius Approach versus Equilibrium Approach. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2019**, *145*, 118672. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118672>.

- [9] Lozano, A.-L.; Cherblanc, F.; Cousin, B.; Bénet, J.-C. Experimental Study and Modelling of the Water Phase Change Kinetics in Soils. *European Journal of Soil Science*, **2008**, *59* (5), 939–949. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2389.2008.01050.x>.
- [10] Gómez-de la Cruz, F. J.; Palomar-Carnicero, J. M.; Casanova-Peláez, P. J.; Cruz-Peragón, F. Experimental Determination of Effective Moisture Diffusivity during the Drying of Clean Olive Stone: Dependence of Temperature, Moisture Content and Sample Thickness. *Fuel Processing Technology*, **2015**, *137*, 320–326. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2015.03.018>.
- [11] Luo, H.; Xia, W.; Xu, Y.; Jiang, Q. Diffusive Model with Variable Effective Diffusivity Considering Shrinkage for Hot-Air Drying of Lightly Salted Grass Carp Fillets. *Drying Technology*, **2013**, *31* (7), 752–758. <https://doi.org/10.1080/07373937.2012.755542>.
- [12] Park, K. J.; Ardito, T. H.; Ito, A. P.; Park, K. J. B.; de Oliveira, R. A.; Chiorato, M. Effective Diffusivity Determination Considering Shrinkage by Means of Explicit Finite Difference Method. *Drying Technology*, **2007**, *25* (7–8), 1313–1319. <https://doi.org/10.1080/07373930701438873>.
- [13] Kechaou, N.; Maâlej, M. A Simplified Model for Determination of Moisture Diffusivity of Date from Experimental Drying Curves. *Drying Technology*, **2000**, *18* (4–5), 1109–1125. <https://doi.org/10.1080/07373930008917758>.
- [14] van der Zanden, A. J. J.; de Wit, M. H. A Procedure to Measure the Diffusion Coefficient of Water in Brick as a Function of the Water Concentration. *Drying Technology*, **2012**, *30* (5), 526–534. <https://doi.org/10.1080/07373937.2011.648782>.
- [15] Touil, A.; Chemkhi, S.; Zagrouba, F. Moisture Diffusivity and Shrinkage of Fruit and Cladode of *Opuntia Ficus-Indica* during Infrared Drying. *Journal of Food Processing*, **2014**, *2014*, 1–9. <https://doi.org/10.1155/2014/175402>.
- [16] Reyes, A.; Eckholt, M.; Troncoso, F.; Efremov, G. Drying Kinetics of Sludge from a Wastewater Treatment Plant. *Drying Technology*, **2005**, *22* (9), 18.
- [17] Itaya, Y.; Mabuchi, S.; Hasatani, M. Deformation Behavior of Ceramic Slabs by Non Uniform Drying. *Drying Technology*, **1995**, *13* (3), 801–819. <https://doi.org/10.1080/07373939508916984>.
- [18] Kowalski, S. J. Thermomechanical Approach to Shrinking and Cracking Phenomena in Drying. *Drying Technology*, **2001**, *19* (5), 731–765. <https://doi.org/10.1081/DRT-100103768>.
- [19] Chemkhi, S.; Zagrouba, F.; Bellagi, A. Mathematical Model for Drying of Highly Shrinkable Media. *Drying Technology*, **2004**, *22* (5), 1023–1039. <https://doi.org/10.1081/DRT-120038578>.

- [20] Kohout, M.; Collier, A. P.; Štěpánek, F. Effective Thermal Conductivity of Wet Particle Assemblies. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2004**, *47* (25), 5565–5574. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.07.031>.
- [21] Yang, H.; Li, Y.; Yang, Y.; Chen, D.; Zhu, Y. Effective Thermal Conductivity of High Porosity Open-Cell Metal Foams. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2020**, *147*, 118974. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118974>.
- [22] Chen, Y.; Li, D.; Xie, X.-Q.; Gao, Y.; He, Y.-L. Theoretical Modeling and Experimental Validation for the Effective Thermal Conductivity of Moist Silica Aerogel. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2020**, *147*, 118842. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118842>.
- [23] Kiranoudis, C. T.; Maroulis, Z. B.; Tsami, E.; Marinos-Kouris, D. Equilibrium Moisture Content and Heat of Desorption of Some Vegetables. *Journal of Food Engineering*, **1993**, *20* (1), 55–74. [https://doi.org/10.1016/0260-8774\(93\)90019-G](https://doi.org/10.1016/0260-8774(93)90019-G).
- [24] Akin, A.; Özbalta, N.; Güngör, A. Equilibrium Moisture Content and Equations for Fitting Sorption Isotherms of Capsicum Annum. *The journal of food GIDA*, **2009**, *34* (4) (205–211), 8.
- [25] Vásquez, V. R.; Coronella, C. J. A Simple Model for Vapor-Moisture Equilibrium in Biomass Substrates. *AIChE Journal*, **2009**, *55* (6), 1595–1603. <https://doi.org/10.1002/aic.11762>.
- [26] Bellur, S. R.; Coronella, C. J.; Vásquez, V. R. Analysis of Biosolids Equilibrium Moisture and Drying. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, **2009**, *28* (2), 291–298. <https://doi.org/10.1002/ep.10353>.
- [27] Skeel, R. D.; Berzins, M. A Method for the Spatial Discretization of Parabolic Equations in One Space Variable. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing*, **1990**, *11* (1), 1–32. <https://doi.org/10.1137/0911001>.
- [28] Li, J.; Bennamoun, L.; Fraikin, L.; Salmon, T.; Toye, D.; Schreinemachers, R.; Léonard, A. Analysis of the Shrinkage Effect on Mass Transfer during Convective Drying of Sawdust/Sludge Mixtures. *Drying Technology*, **2014**, *32* (14), 1706–1717. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.924136>.
- [29] Guo, W.; Lim, C. J.; Bi, X.; Sokhansanj, S.; Melin, S. Determination of Effective Thermal Conductivity and Specific Heat Capacity of Wood Pellets. *Fuel*, **2013**, *103*, 347–355. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2012.08.037>.
- [30] Yang, I.; Kim, D.; Lee, S. Construction and Preliminary Testing of a Guarded Hot Plate Apparatus for Thermal Conductivity Measurements at High Temperatures. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **2018**, *122*, 1343–1352. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.02.072>.

- [31] Fang, J.; Huang, Y.; Lew, C. M.; Yan, Y.; Pilon, L. Temperature Dependent Thermal Conductivity of Pure Silica MEL and MFI Zeolite Thin Films. *Journal of Applied Physics*, **2012**, *111* (5), 054910. <https://doi.org/10.1063/1.3692754>.
- [32] Y. A Çengel. *Heat Transfer: A Practical Approach*; New York: McGraw-Hill., 2004; Vol. 2.
- [33] Atabani, A. E.; Shobana, S.; Mohammed, M. N.; Uğuz, G.; Kumar, G.; Arvindnarayan, S.; Aslam, M.; Al-Muhtaseb, A. H. Integrated Valorization of Waste Cooking Oil and Spent Coffee Grounds for Biodiesel Production: Blending with Higher Alcohols, FT-IR, TGA, DSC and NMR Characterizations. *Fuel*, **2019**, *244*, 419–430. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2019.01.169>.
- [34] Belloulid, M. O.; Hamdi, H.; Mandi, L.; Ouazzani, N. Solar Drying of Wastewater Sludge: A Case Study in Marrakesh, Morocco. *Environmental Technology*, **2019**, *40* (10), 1316–1322. <https://doi.org/10.1080/09593330.2017.1421713>.
- [35] Léonard, A.; Vandevenne, P.; Salmon, T.; Marchot, P.; Crine, M. Wastewater Sludge Convective Drying: Influence of Sludge Origin. *Environmental Technology*, **2004**, *25* (9), 1051–1057. <https://doi.org/10.1080/09593330.2004.9619398>.
- [36] Pinto, L. A. A.; Tobinaga, S. Diffusive Model with Shrinkage in the Thin-Layer Drying of Fish Muscles. *Drying Technology*, **2006**, *24* (4), 509–516. <https://doi.org/10.1080/07373930600612040>.
- [37] Dissa, A. O.; Compaore, A.; Tiendrebeogo, E.; Koulidiati, J. An Effective Moisture Diffusivity Model Deduced from Experiment and Numerical Solution of Mass Transfer Equations for a Shrinkable Drying Slab of Microalgae. *Drying Technology*, **2014**, *32* (10), 1231–1244. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.897234>.
- [38] Ketelaars, A. A. J. Drying Deformable Media Kinetics, Shrinkage and Stresses. *Drying Technology*, **1994**, *12* (4), 983–987. <https://doi.org/10.1080/07373939408960008>.
- [39] Avelar, N. V.; Ribeiro, B. C.; Rezende, A. A. P.; Silva, C. M.; Carneiro, A. de C. O.; Martins, M. A. Thermal Drying of Industrial Sludge Using Forced Aeration. *Environmental Technology*, **2019**, *40* (25), 3297–3307. <https://doi.org/10.1080/09593330.2018.1470679>.
- [40] Vaxelaire, J. Moisture Sorption Characteristics of Waste Activated Sludge. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, **2001**, *76* (4), 377–382. <https://doi.org/10.1002/jctb.392>.
- [41] Arlabosse, P.; Rodier, E.; Ferrasse, J. H.; Chavez, S.; Lecomte, D. Comparison between Static and Dynamic Methods for Sorption Isotherm

- Measurements. *Drying Technology*, **2003**, 21 (3), 479–497. <https://doi.org/10.1081/DRT-120018458>.
- [42] Bougayr, E. H.; Lakhali, E. K.; Idlimam, A.; Lamharrar, A.; Kouhila, M.; Berroug, F. Experimental Study of Hygroscopic Equilibrium and Thermodynamic Properties of Sewage Sludge. *Applied Thermal Engineering*, **2018**, 143, 521–531. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2018.07.048>.
- [43] Freire, F. B.; Pires, E. C.; Freire, J. T. Moisture Adsorption and Desorption Behavior of Sludge Powder. *Environmental Technology*, **2007**, 28 (11), 1195–1203. <https://doi.org/10.1080/09593332808618880>.
- [44] R. Andrade; R. Lemus; C. Pérez. Models of Sorption Isotherms for Food: Uses and Limitations. *Vitae*, **2011**, 18 (3).
- [45] Vaxelaire, J.; Bongiovanni, J. M.; Puiggali, J. R. Mechanical Dewatering and Thermal Drying of Residual Sludge. *Environmental Technology*, **1999**, 20 (1), 29–36. <https://doi.org/10.1080/09593332008616789>.
- [46] Shokri, N.; Lehmann, P.; Vontobel, P.; Or, D. Drying Front and Water Content Dynamics during Evaporation from Sand Delineated by Neutron Radiography: Drying Front and Water Content Dynamics. *Water Resources Research*, **2008**, 44 (6). <https://doi.org/10.1029/2007WR006385>.
- [47] Pickles, C. A. Drying Kinetics of Nickeliferous Limonitic Laterite Ores. *Minerals Engineering*, **2003**, 16 (12), 1327–1338. [https://doi.org/10.1016/S0892-6875\(03\)00206-1](https://doi.org/10.1016/S0892-6875(03)00206-1).
- [48] Çağlar, A.; Toğrul, İ. T.; Toğrul, H. Moisture and Thermal Diffusivity of Seedless Grape under Infrared Drying. *Food and Bioprocess Processing*, **2009**, 87 (4), 292–300. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2009.01.003>.
- [49] Laliberté, M. A Model for Calculating the Heat Capacity of Aqueous Solutions, with Updated Density and Viscosity Data. *Journal of Chemical & Engineering Data*, **2009**, 54 (6), 1725–1760. <https://doi.org/10.1021/je8008123>.

## FOLIO ADMINISTRATIF

### THESE DE L'UNIVERSITE DE LYON OPEREE AU SEIN DE L'INSA LYON

NOM : AL AHMAD

DATE de SOUTENANCE : 24/11/2020

Prénoms : Layth

TITRE : Étude expérimentale et modélisation des mécanismes de séchage des boues industrielles.

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : 2020LYSEI111

Ecole doctorale : MEGA (Mécanique, énergétique, génie civil, acoustique).

Spécialité : Thermique Energétique

#### RESUME :

Ce travail de thèse s'intéresse à l'étude expérimentale et à la modélisation des mécanismes du séchage de boues industrielles. Le partenaire industriel de cette thèse a proposé le procédé de séchage de boue in-situ, qui vise le conditionnement de boues de co-précipitation issues du retraitement d'effluent radioactifs par séchage à l'intérieur d'un fût. Ce procédé permet d'éliminer l'eau de la boue par un traitement thermique sous vide. La finalité est d'obtenir une boue sèche, physiquement stable, avec la plus faible teneur en eau possible. L'objectif principal de ce travail est alors d'identifier les phénomènes qui se produisent au sein de la boue au cours du séchage, d'identifier les processus physiques et chimiques mis en jeu afin de modéliser le séchage. Les phénomènes présents peuvent se regrouper en phénomènes de transferts (chaleur et de matière) et en rétrécissement. De plus, lors du séchage les concentrations en sels solubles augmentent dû à l'évaporation. A l'atteinte des seuils de solubilités, des sels précipitent mettant en évidence le phénomène de cristallisation qui affecte aussi le séchage de la boue. Ces phénomènes dépendent principalement des paramètres de transferts qui varient en fonction des conditions opératoires du séchage, de la teneur en eau de la boue... L'étude expérimentale de séchage comprend l'acquisition des caractéristiques intrinsèques de la boue en fonction de la teneur en eau, la température et la pression. Un modèle numérique qui simule le procédé de séchage de la boue à petite échelle est développé sous COMSOL-Multiphysics et prend en compte la géométrie déformable du matériau. Les mises en équations sont validées à partir des résultats expérimentaux. Un changement d'échelle est mis en œuvre avec la conception d'une maquette à l'échelle du laboratoire (1/23ème du fût industriel). Des expériences de séchage de boue réalisées à cette échelle sont dédiées à la validation du modèle. Une étude paramétrique et une étude de sensibilité sont également réalisées sur le modèle de séchage.

MOTS-CLÉS : Séchage, Boue industrielle, modélisation numérique, transfert de matière, transfert de chaleur, retrait.

Laboratoire (s) de recherche : CETHIL (UMR 5008), L3MR (CEA),

Directeur de thèse: Marc CLAUSSE

Président de jury : Léonard Angélique

Composition du jury : Patrick GLOUANNEC, Manuel MARCOUX, Patricia ARLABOSSE, Angélique LEONARD, Marc CLAUSSE, Christelle LATRILLE, Roula GHAZAL, Denise BLANC-BISCARAT.