



HAL
open science

Simulation de l'hydrodynamique et des transferts de matière et de chaleur dans les réacteurs à lit fixe

Farouk Soltana

► **To cite this version:**

Farouk Soltana. Simulation de l'hydrodynamique et des transferts de matière et de chaleur dans les réacteurs à lit fixe. Alimentation et Nutrition. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004. Français. NNT : 2004INPL069N . tel-01749817

HAL Id: tel-01749817

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749817v1>

Submitted on 29 Mar 2018

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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



1360363480

OU INPLOGSN

(M) 2004 SOLTANA, F.

Département de formation doctorale en génie des procédés

Institut National
Polytechnique de Lorraine

École doctorale RP2E

Simulation de l'hydrodynamique et des transferts de matière et de chaleur dans les réacteurs à lit fixe

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 11 octobre 2004

pour l'obtention du

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

par

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

Farouk SOLTANA

Ingénieur de l'Université A. Mira de Béjaia (Algérie)

Composition du jury

Rapporteurs : M. P. MARCHOT, Professeur (Université de Liège)
M. D. SCHWEICH, Directeur de Recherches (CPE de Lyon)

Examineurs : M. O. DELSART, Ingénieur de Recherches (TOTAL, Gonfreville)
M. M.A. LATIFI, Professeur (ENSIC-INPL)
M. F. LESAGE, Maître de conférences (ENSIC-INPL)
M. G. WILD, Directeur de Recherches (CNRS-ENSIC-INPL)

Mis en page avec la classe thloria.

A mes parents et ma femme

Table des matières

Table des figures	vii
Liste des tableaux	xiii
Nomenclature	xv
Introduction générale	1
1 Généralités et étude bibliographique	5
1.1 Régimes d'écoulement	5
1.1.1 Description des régimes d'écoulement	5
1.1.2 Transitions entre les régimes d'écoulement (diagrammes d'écoulement)	6
1.1.3 Modélisation des transitions entre régimes	7
1.2 Pertes de charge	8
1.3 Saturation du liquide	9
1.3.1 Corrélations	9
1.4 Transfert de matière	11
1.4.1 Corrélations	11
1.5 Transfert de chaleur	13
1.5.1 Modèle homogène	13
1.5.2 Modèle hétérogène	16
1.6 Conclusion	18
2 Modélisation des écoulements en milieu poreux	19
2.1 Prise de moyenne en milieux poreux	19
2.1.1 Forme générale d'une loi de conservation à l'échelle microscopique .	20
2.1.2 Généralités sur la prise de moyenne en milieu poreux	21
2.1.3 Prise de moyenne en milieu poreux monophasique	22

2.2	Modélisation et simulation en milieu poreux diphasique	23
2.2.1	Approche "classique" (mécanique des fluides)	24
2.2.2	Autres approches	27
2.3	Formulation statistique moyennée	32
2.3.1	Principes et définitions	32
2.3.2	Résolution du système	35
2.3.3	Description de l'algorithme de résolution	37
2.3.4	Exemples d'application en milieu poreux	41
2.4	Conclusion	42
3	Modélisation et simulation des lits fixes monophasique	43
3.1	Hydrodynamique	43
3.1.1	Formulation du problème	43
3.1.2	Profil de porosité	45
3.1.3	Equation de fermeture	47
3.1.4	Discrétisation et résolution	47
3.1.5	Résultats et discussions	48
3.2	Transfert de matière liquide/paroi	51
3.2.1	Dispositif expérimental et principe de mesure	51
3.2.2	Formulation du problème	53
3.2.3	Résultats et discussions	56
3.3	Conclusion	58
4	Simulation des RCLFA en régime ruisselant et dispersé	59
4.1	Hydrodynamique	59
4.1.1	Formulation du problème	59
4.1.2	Conditions initiales et aux limites	60
4.1.3	Applications au régime ruisselant	61
4.1.4	Applications au régime dispersé	80
4.1.5	Conclusion	82
4.2	Transfert de matière	84
4.2.1	Formulation du problème	84
4.2.2	Résultats et discussions	85
4.2.3	Conclusion	90

5	Simulation du régime pulsé induit en RCLFA	91
5.1	Définitions et bibliographie	91
5.1.1	Influence de l'opération périodique sur les performances des RCLFA	93
5.1.2	Revue bibliographique sur les études hydrodynamiques des RCLFA en régime pulsé induit	93
5.2	Simulation de l'hydrodynamique en régime pulsé induit	96
5.2.1	Conditions initiales et aux limites	97
5.2.2	Résultats de simulation	98
5.3	Transfert de matière	101
5.3.1	Formulation et conditions initiales et aux limites	101
5.3.2	Résultats de simulations	102
5.4	Conclusion	107
6	Transfert de chaleur dans un réacteur à lit fixe monophasique	109
6.1	Formulation du problème de transfert de chaleur	110
6.2	Système considéré	111
6.3	Modèle à une température	111
6.3.1	Propriétés du fluide équivalent	112
6.3.2	Conditions initiales et aux limites	112
6.3.3	Solutions analytiques	113
6.3.4	Résultats de simulations du modèle homogène	114
6.4	Modèle à deux températures	118
6.4.1	Conditions initiales et aux limites	119
6.4.2	Modélisation de l'échange de chaleur liquide-solide	119
6.4.3	Résultats de simulations	120
6.5	Conclusion	133
	Conclusion générale et perspectives	135
	Bibliographie	139

Table des figures

1.1	Régime d'écoulement	6
2.1	Schéma d'un volume élémentaire représentatif	21
2.2	Schéma d'une cellule dans un RCFLA en utilisant la DCM	29
2.3	Définition des différentes variables pour une cellule ICE	37
2.4	Localisation des différentes variables dans une cellule de calcul dans CFDLib	39
3.1	Schéma simplifié du réacteur en 2D	44
3.2	Profils de porosité	46
3.3	Schéma de discrétisation en 2D pour un réacteur à lit fixe monophasique dans CFDLib	48
3.4	Profils de vitesse radiale à différents Reynolds ($Re_l = 100, 200$) et à mi-hauteur du réacteur ($z = H/2$)	49
3.5	Profils de vitesse radiale à différents Reynolds ($Re_l = 300, 500$) et à mi-hauteur du réacteur ($z = H/2$)	50
3.6	Comparaison des pertes de charge calculées avec celles fournies par la relation d'Ergun	51
3.7	Tracé schématique d'une courbe intensité-potentiel	52
3.8	Schéma simplifié de la zone réactive du réacteur	54
3.9	Profils radiaux de la concentration de $Fe(CN)_6^{-3}$ pour différentes positions axiales ($Re_l = 78$)	56
3.10	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière liquide/paroi aux mesures expérimentales de Naderifar (1995)	57
3.11	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière liquide/paroi aux corrélations de la littérature	58
4.1	Dimensions du réacteur et schéma de discrétisation en 2D dans CFDLib	64
4.2	Profil de pression et de saturation pour $t = 40$ s ($U_l = 0,007$ m/s et $U_g = 0,066$ m/s).	65
4.3	Profil de pression et de saturation pour $t = 65$ s ($U_l = 0,007$ m/s et $U_g = 0,066$ m/s).	66
4.4	Comparaison des saturations de liquide obtenues par simulation et par la formulation pression-saturation de Propp (1998) pour des vitesses de propagation identiques.	67

4.5	Comparaison des pertes de charge mesurées et calculées pour différents modèles de fermeture.	68
4.6	Comparaison de la saturation du liquide donnée par Ellman et al. (1990) et calculée pour différents modèles de fermeture.	69
4.7	Comparaison des saturations du liquide calculées aux corrélations de la littérature.	69
4.8	Variations radiales de la saturation locale du liquide pour le profil de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983).	71
4.9	Zones de distribution considérées.	72
4.10	Représentation d'un écoulement stratifié dans une cellule de calcul	74
4.11	Comparaison des profils radiaux de vitesse en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=7$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone parietale})=0,036R_c$).	76
4.12	Comparaison des profils radiaux de vitesse en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=9$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone parietale})=0,036R_c$).	76
4.13	Comparaison des profils radiaux de vitesse en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=11$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone parietale})=0,036R_c$).	77
4.14	Comparaison des variations radiales de la saturation du liquide en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=7$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone parietale})=0,036R_c$).	78
4.15	Comparaison des variations radiales de la saturation du liquide en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=9$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone parietale})=0,036R_c$).	78
4.16	Comparaison des variations radiales de la saturation de liquide en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=11$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone parietale})=0,036R_c$).	79
4.17	Configuration des trois phases en régime dispersé.	80
4.18	Comparaison des pertes de charge calculées aux corrélations de la littérature. 81	
4.19	Comparaison des saturations du liquide calculées aux corrélations de la littérature.	82
4.20	Profils radiaux de la concentration en hexacyanoferrate III à différentes positions axiales ($Re_l=13,3$ et $Re_g=26,8$).	85
4.21	Variations du coefficient global de transfert de matière liquide/paroi avec le débit de gaz pour différents débits de liquide ($Sc=1215$).	86
4.22	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux mesures expérimentales en régime ruisselant.	87
4.23	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux corrélations de la littérature en régime ruisselant.	87
4.24	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux mesures expérimentales en régime dispersé.	88
4.25	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux corrélations de la littérature en régime dispersé à porosité constante.	89

4.26	Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux corrélations de la littérature en régime dispersé pour un profil de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983).	89
5.1	Variations périodiques de la vitesse d'alimentation du liquide en régime pulsé induit	92
5.2	Vitesse de propagation de l'onde liquide ($V_w = \frac{\Delta z}{\Delta t}$)	94
5.3	Modes de fonctionnement du régime pulsé induit.	95
5.4	Variations de la rétention du liquide le long du réacteur ($U_{lmoy} = 0,008$ ms ⁻¹ , $U_g = 0,10$ ms ⁻¹ , $f = 0,1$ Hz, $U_{lp} = 0,014$ ms ⁻¹ , $U_{lb} = 0,002$ ms ⁻¹ et $t_p = t_b = 5$ s).	98
5.5	Évolution de la fraction du liquide au cours du temps à différentes positions axiales du réacteur ($U_{lmoy} = 0,008$ ms ⁻¹ , $U_g = 0,10$ ms ⁻¹ , $f = 0,1$ Hz, $U_{lp} = 0,014$ ms ⁻¹ , $U_{lb} = 0,002$ ms ⁻¹ et $t_p = t_b = 5$ s).	99
5.6	Vitesse de propagation en fonction de la vitesse moyenne du liquide ($t_p = t_b = 10$ s, $U_g = 0,10$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s et $U_{lp} = 4-24$ mm/s)	100
5.7	Comparaison des résultats de calcul de la vitesse de propagation à la corrélation de Boelhouwer et al. (2001b)	100
5.8	Profils radiaux de la concentration en hexacyanoferrate III à différentes positions axiales et différents temps de simulation ($U_{lmoy} = 6$ mm/s, $U_g = 0,10$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s, $f = 0,05$ et $Z = L_e/2$)	102
5.9	Coefficient de transfert de matière liquide/paroi temporel, $\bar{k}_d(t)$, en fonction du temps ($U_{lmoy} = 6$ mm/s, $U_g = 0,10$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s, $f = 0,05$ et $Z = L_e/2$)	103
5.10	Comparaison des résultats du transfert de matière en régimes pulsé induit et ruisselant ($U_g = 0,1$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s, $U_{lp} = 3-13$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s et $f = 0,05$ Hz)	104
5.11	Évolution du coefficient global de transfert de matière avec la fréquence d'alimentation ($U_g = 0,1$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s et $U_{lp} = 3-13$ mm/s)	104
5.12	Variations du coefficient de transfert global de matière liquide/paroi avec la vitesse liquide de base de l'alimentation, ($U_g = 0,1$ m/s, $U_{lp} = 3-13$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s et $f = 0,05$ Hz)	105
5.13	Comparaison entre $\bar{k}_{d,app}$ (Eq. 5.23) et les valeurs obtenues par simulation	106
5.14	Schéma illustrant l'influence de l'allure de la courbe $\bar{k}_d = f(U_l)$ en opération stationnaire et en régime pulsé induit	106
6.1	Profils axiaux de température à différentes positions radiales pour le modèle homogène (H=42 cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	115
6.2	Profils radiaux de température à différentes positions axiales pour le modèle homogène (H=42 cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	115
6.3	Comparaison des résultats de simulation à la solution analytique dans la direction axiale pour le modèle homogène et pour une température constante à la paroi ($r = 15,2$ mm, H=42 cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	116

6.4	Profils de température et solution analytique du modèle homogène dans la direction radiale et pour une température constante à la paroi ($z = 39,9$ cm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	116
6.5	Comparaison des profils de température numérique et la solution analytique du modèle homogène pour un flux constant à la paroi dans la direction radiale ($r = 15,2$ mm, $q_w = 1000$ W.m ⁻² , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	117
6.6	Comparaison des résultats de simulation à la solution analytique du modèle homogène dans la direction radiale et pour un flux constant à la paroi ($z = 39,9$ cm, $q_w = 1000$ W.m ⁻² , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	118
6.7	Température du solide et du liquide en fonction de la position axiale pour un modèle hétérogène ($r = 15,2$ mm, $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	121
6.8	Profil radial de température du liquide et du solide pour un modèle hétérogène ($z = 39,9$ cm, $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	121
6.9	Comparaison des résultats axiaux de calcul obtenus en utilisant le modèle à une température et la température moyenne du modèle à deux températures ($r = 15,2$ mm, $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	122
6.10	Profils radiaux de température obtenus en utilisant le modèle à une température et température moyenne du modèle à deux températures ($z = 39,9$ cm, $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	123
6.11	Variations axiales de température de la phase solide et de la phase liquide en absence d'échange de chaleur solide-liquide, $h_{fs} = 0$ ($r = 15,2$ mm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	124
6.12	Profils radiaux des températures du solide et du liquide en absence d'échange de chaleur solide-liquide, $h_{fs} = 0$ ($z = 39,9$ cm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	124
6.13	Variations axiales des températures du solide et du liquide pour un coefficient d'échange de chaleur de $h_{fs} = 30,35$ W.m ⁻² K ⁻¹ ($r = 15,2$ mm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	125
6.14	Profils radiaux des températures du solide et du liquide pour un coefficient d'échange de chaleur de $h_{fs} = 30,35$ W.m ⁻² K ⁻¹ ($z = 39,9$ cm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	125
6.15	Variations axiales de la température moyenne pour les trois coefficients d'échange de chaleur, $h_{fs} = 0$; $30,35$; 3035 W.m ⁻² K ⁻¹ ($r = 15,2$ mm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	126
6.16	Température du liquide en fonction de la position radiale pour trois positions axiales. Première configuration de répartition de flux (cas1) ($q_s = 600$ W.m ⁻² , $q_l = 400$ W.m ⁻² , $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	128
6.17	Variations axiales de la température du liquide pour trois positions axiales. Première configuration de répartition de flux (cas1) ($q_s = 600$ W.m ⁻² , $q_l = 400$ W.m ⁻² , $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	128
6.18	Températures du liquide et du solide en fonction de la position radiale pour les deux cas de distribution de flux de chaleur entre phases. Cas1 : $q_s = 600$ W.m ⁻² , $q_l = 400$ W.m ⁻² ; cas2 : $q_s = 651$ W.m ⁻² , $q_l = 349$ W.m ⁻² ($z = 39,9$ cm, $h_{fs} = 3035$ W.m ⁻² K ⁻¹ , $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).	129

-
- 6.19 Profils axiaux des températures du solide et du liquide pour les deux cas de distribution de flux de chaleur entre phase. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($r=15,2 \text{ mm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$). 130
- 6.20 Comparaison des résultats axiaux entre le modèle à une température et le modèle à deux températures pour une condition de flux constant à la paroi. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($r=15,2 \text{ mm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$). 131
- 6.21 Comparaison des résultats radiaux entre le modèle à une température et le modèle à deux températures pour une condition de flux constant à la paroi. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($z=39,9 \text{ cm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$). 131
- 6.22 Températures axiales du liquide et du solide pour un coefficient d'échange $h_{fs} = 30,35 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($r=15,2 \text{ mm}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$). . . 132
- 6.23 Températures radiales du liquide et du solide pour un coefficient d'échange $h_{fs} = 30,35 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($z=39,9 \text{ cm}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$). . . . 133

Liste des tableaux

1.1	Corrélations de saturation liquide en fonction des pertes de charge	10
1.2	Corrélations de transfert de matière	12
1.3	Corrélations de la conductivité thermique effective en RCLFA	15
1.4	Corrélations du coefficient de transfert de chaleur en écoulement monophasique	17
3.1	valeurs de ϵ_0 pour différents modèles de porosité	46
4.1	Variations de la distribution liquide avec le débit de gaz ($U_l = 0,003 \text{ ms}^{-1}$).	73
4.2	Variations de la distribution liquide avec le débit liquide ($U_g = 0,05 \text{ ms}^{-1}$).	73
4.3	Exemple de Comparaison entre les calculs et l'expérience ($U_l=0,003 \text{ ms}^{-1}$ et $U_g=0,05 \text{ ms}^{-1}$).	73
6.1	Propriétés physico-chimiques des phases	111
6.2	Propriétés physico-chimiques du fluide équivalent	112
6.3	Répartition des flux de chaleur entre les phases solide et liquide ($q_w = 1000 \text{ W.m}^{-2}$)	127

Nomenclature

Symboles latins

A, B	: constantes d'Ergun	-
a_v	: aire interfaciale	$m^2 \cdot m^{-3}$ de grain
a_c	: aire de couche	$m^2 \cdot m^{-3}$ de lit
a_{ls}	: surface interfaciale liquide-solide $(\frac{6(1-\epsilon)}{d_p} + \frac{4}{D_c})$	m^2
C	: concentration	$mol \cdot m^{-3}$
C_p	: capacité calorifique à pression constante	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
c	: vitesse du son	$m \cdot s^{-1}$
D	: coefficient de diffusion moléculaire	$m^2 \cdot s^{-1}$
D_c	: diamètre de la colonne	m
d_e	: diamètre équivalent	m
d_p	: diamètre de particules	m
d_h	: diamètre hydraulique	m
e_0	: énergie interne	J
F_α	: résultante de forces appliquées sur la phase α	N
F	: constante de Faraday	96500 C/équiva.
G	: débit massique du gaz	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
g	: accélération gravitationnelle	9,81 $m \cdot s^{-1}$
H	: longueur de la colonne	m
h	: coefficient de transfert de chaleur	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
I	: intensité de courant	A
J_n	: fonction de Bessel de première espèce d'ordre n	
K_α	: perméabilité intrinsèque de la phase α	m^2
$k_{r\alpha}$: perméabilité relative	m^2
$\overline{k_d}$: coefficient local de transfert de matière en paroi	$m \cdot s^{-1}$
$\overline{\overline{k_d}}$: coefficient global de transfert de matière en paroi	$m \cdot s^{-1}$
$\overline{\overline{\overline{k_d}}}$: coefficient global de transfert de matière en régime pulsé induit	$m \cdot s^{-1}$
L	: débit massique du liquide	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
L_e	: longueur de l'électrode	m
l	: échelle de longueur microscopique	m
M_i	: masse molaire	$kg \cdot mol^{-1}$
m	: masse	kg
p	: pression statique	Pa
p^0	: pression d'équilibre (Chap.2)	Pa

P	: pression motrice	Pa
p_c	: pression capillaire	Pa
q	: flux de chaleur	$W.m^{-2}$
q_w	: flux de chaleur à la paroi	$W.m^{-2}$
R_c	: rayon de la colonne	m
r	: coordonnée radiale	m
S_0	: entropie	$J.K^{-1}$
S	: section	m^2
S_α	: saturation	-
T	: température	K
t	: temps	s
t_p	: temps pulsé (Chap. 5)	s
t_b	: temps de base (Chap. 5)	s
U	: vitesse superficielle	$m.s^{-1}$
u	: vitesse interstitielle	$m.s^{-1}$
u_m	: vitesse du maillage mobile	$m.s^{-1}$
u_k^*	: vitesse de flux (Chap. 2)	$m.s^{-1}$
V	: volume	m^3
V_w	: vitesse de l'onde de choc	$m.s^{-1}$
v_k	: volume massique	$m^3.kg^{-1}$
X_{kl}	: coefficient d'échange de quantité de mouvement	
X_r	: coefficient d'échange de chaleur fluide-solide	
z	: coordonnée axiale	m

Symboles grecs

α_k	: fraction volumique de la phase k	-
α	: diffusivité thermique	$\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$
ϵ	: porosité	-
ϵ_B	: porosité moyenne du lit	-
ϕ	: facteur de mouillabilité	-
Φ	: coefficient correctif de Larachi (1991) (Eq. 1.3)	-
λ	: paramètre de Baker, $\lambda = \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_{air}} \cdot \frac{\rho_l}{\rho_{eau}}}$	-
λ	: conductivité thermique	$\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$
Λ_r, Λ_z	: conductivité thermique effective radiale et axiale	$\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$
μ	: viscosité dynamique	Pa.s
ν	: viscosité cinématique	$\text{m}^2.\text{s}^{-1}$
θ_l^0	: fraction volumique résiduelle du liquide	-
θ_k	: fraction volumique moyenne de k ($\theta_k = \langle \alpha_k \rangle$)	-
θ_k^e	: fraction volumique moyenne de k à l'équilibre	-
ρ	: masse volumique	kg.m^{-3}
σ	: tension superficielle	N.m^{-1}
τ_p	: temps de propagation	s
τ	: tenseur	N.m^{-2}
τ_i	: contrainte de frottement à l'interface	N.m^{-2}
Ψ	: paramètre de Baker $\Psi = \frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{eau}} \left(\frac{\rho_{eau}}{\rho_L} \right)^2 \right)^{0.33}$	-
ψ	: grandeur physique (extensité)	-
ζ	: fonction de Leverett (Eq. 4.21)	-

Nombres adimensionnels

$E\ddot{o}$: nombre d'Eötvös	$\frac{\rho_f d_p g c^2}{\sigma_l (1-\epsilon)^2}$
Ga	: nombre de Galilée	$\frac{\rho_f^2 g d_p^3}{\mu_f^2}$
Ga^*	: nombre de Galilée modifié	$\frac{\rho_f^2 g a_e^3 \epsilon^3}{\mu_f^2 (1-\epsilon)^3}$
Nu	: nombre de Nusselt	$\frac{h d_p}{\lambda}$
Pe_r	: nombre de Péclet radial	$\frac{\rho_l U_i C_{pl} R_c}{\Lambda_r}$
Pr	: nombre de Prandtl	$\frac{C_p \mu}{\lambda}$
Re	: nombre de Reynolds basé sur le diamètre de particules	$\frac{\rho_f U_f d_p}{\mu_f}$
Re_i	: nombre de Reynolds interstitiel	$\frac{\rho_f U_f d_p}{\mu_f (1-\epsilon)}$
Re'	: nombre de Reynolds modifié	$\frac{\rho_f U_f}{\mu_f a_{ls} \theta_f}$
Sc	: nombre de Schmidt	$\frac{\nu}{D}$
Sh	: nombre de Sherwood	$\frac{k_d}{D}$
Sh''	: nombre de Sherwood modifié	$\frac{k_d}{a_{ls} D}$
We	: nombre de Weber	$\frac{(\rho u)^2 d_p}{\rho \sigma}$
X_l	: paramètre de Lockhart-Martinelli	$\sqrt{\frac{\Delta P_l}{\Delta P_g}}$

Indices

f	: relatif aux fluides
g	: relatif au gaz
j	: numéro de la cellule de calcul
l	: relatif au liquide
m	: relatif au repère mobile
r	: radial
p	: relatif à la particule
w	: relatif à la paroi
z	: axial
α	: relatif à une phase fluide (gaz ou liquide)

Exposants

c	: relatif au centre de la cellule
e	: équilibre
f	: relatif au milieu de la face d'une cellule de calcul
L	: lagrangien
n	: indice de temps

Remerciements

Je voudrais en premier lieu remercier M. Hans-Günther LINTZ, Directeur du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique à mon arrivée, pour m'y avoir accueilli, et Monsieur Michel Sardin actuel directeur du LSGC.

Je tiens également à adresser mes plus vifs remerciements à mon directeur de thèse, le professeur Abderrazak LATIFI, pour le soutien qu'il m'a apporté dans tous les domaines. Au court de mon travail de thèse, il m'a énormément apporté par sa compétence scientifique et sa rigueur dont il sait faire preuve dans chaque discussion, qu'il trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance.

Qu'il me soit permis de remercier François LESAGE, pour son aide, ses précieux conseils et pour les nombreuses discussions que nous avons pu avoir et qui m'ont été plus que profitables.

Mes remerciements vont aussi à Daniel SCHWEICH et Pierre MARCHOT, Olivier DELSART et Gabriel WILD pour avoir accepté d'évaluer ce travail. Gabriel WILD m'a par ailleurs énormément apporté sur le plan scientifique, en particulier son expérience dans le domaine des trickle beds, et je lui en suis sincèrement reconnaissant.

Certains des résultats présentés ici sont issus du travail de DEA de Reda BOUTOBA, que je tiens à le remercier. D'autre part, je tiens à remercier Didier BORREMANS, pour son aide précieuse en particulier dans l'étude du régime pulsé induit, mais aussi pour sa gentillesse exemplaire.

Je voudrais remercier tous les membres du groupe ex-TASC, permanents et thésards, qui ont fait que mon séjour au laboratoire fut particulièrement agréable. Mes pensées vont à Jean-Pierre, Mauricio, Jean Marc, Djalal, Nicola, Denis, Sebastien, Michel, Virginie, Thibault et Marie-Noëlle.

Je tient à remercier chaleureusement mes amis Réda, pour sa bonne humeur et sa générosité, Dorra, pour son tempérament et ses phrases cultes ¹, Souhir, Akrama, Fufu et Mahomet avec qui j'ai passé quatre années pleines de joies, de gaietés et de fou rire.

Pour finir, je veux remercier ma mère, mon père et ma femme parce qu'ils ont toujours cru en moi, m'ont toujours soutenu et toujours fait confiance.

¹*La mae la Gazouz*

Introduction générale

Les réacteurs triphasiques gaz-liquide-solide représentent une famille de contacteurs polyphasiques dans l'industrie. Ils peuvent être classés en deux grandes catégories :

- les réacteurs à solide suspendu ou fluidisé
- les réacteurs à lit fixe

Dans la dernière catégorie, deux configurations d'écoulement sont possibles : écoulement à contre-courant et écoulement à co-courant. Dans ce travail seuls les réacteurs à co-courant vers le bas de gaz et de liquide sont concernés. Ils sont également appelés réacteurs catalytiques à lit fixe arrosé (RCLFA) ou *trickle-bed*. Le cas de l'écoulement de liquide seul dans le milieu poreux sera également étudié.

Un RCLFA est un lit de particules fixes au travers duquel un gaz et un liquide s'écoulent à co-courant vers le bas. Les particules constituent le garnissage et peuvent être de taille et de forme diverses, poreuses ou non. L'avantage de ce type de procédé est une conversion élevée et une bonne sélectivité (Al-Dahhan et al., 1997). Par contre, les inconvénients majeurs sont la maldistribution des phases fluides qui génère la formation de chemins préférentiels et la faible conductivité thermique qui conduit à la formation de points chauds dans le cas de réactions fortement exothermiques (Marcandelli et al., 1999; Boelhouwer et al., 2001a). On peut remarquer aussi que, contrairement aux réacteurs à contre-courant, les réacteurs à co-courant ne présentent pas de points d'engorgement et peuvent donc opérer à des débits de fluides élevés. De plus, l'écoulement vers le bas des phases fluides permet de limiter fortement les pertes de charge.

Les RCLFA sont largement répandus dans l'industrie pétrolière (hydrodésulfuration des gazoles, hydrocraquage catalytique...) (Gianetto et Specchia, 1992; Al-Dahhan et al., 1997; Biardi et Baldi, 1999), mais leur utilisation se développent de plus en plus dans d'autres domaines, notamment dans les procédés biochimiques et dans le traitement des eaux usées (lits bactériens) (Lobo et al., 1999; Benthack et al., 2001).

Bien que leur champs d'utilisation soit vaste, les RCLFA posent toujours des problèmes de dimensionnement et de maîtrise du fonctionnement, essentiellement dus à :

- la complexité des phénomènes mis en jeu
- l'absence de mesures expérimentales surtout à l'échelle locale de l'hydrodynamique et des transferts de matière et de chaleur.

La solution consiste à mener simultanément des mesures expérimentales (surtout locales) et des études de modélisation et de simulation, avec des interactions fortes et permanentes entre les deux approches.

Concernant les mesures expérimentales, plusieurs études, essentiellement globales, ont été effectuées dans les réacteurs à lit fixe, notamment au sein du LSGC. À titre d'exemple, on peut citer les travaux de Ellman et al. (1990), Larachi (1991), Naderifar (1995) et Marcandelli (1999).

En revanche, très peu d'études ont été menées sur la simulation des écoulements dans ce type de réacteur (Jiang et al., 2000a; Souadnia et Latifi, 2001; Ortiz-Arroyo et al., 2002).

Ce travail a donc pour objectif de simuler les phénomènes de transport et de transfert dans les RCLFA. Les résultats obtenus seront comparés aux mesures expérimentales précédemment réalisées au laboratoire.

L'approche du type « bilans de populations » développée par Kashiwa et Rauenzahn (1994) nous a semblée la plus adaptée pour la modélisation des écoulements en milieu poreux. Il s'agit d'une méthode statistique appliquée aux écoulements en état de non-équilibre. L'un des avantages principaux de cette formulation est qu'elle fait apparaître clairement les différents termes à modéliser afin de fermer le système d'équations.

En utilisant cette formulation, l'hydrodynamique et le transfert de matière liquide/paroi sont ainsi simulés. L'écoulement monophasique de liquide dans un lit fixe est traité avant l'écoulement gaz/liquide. Ensuite, nous nous sommes intéressés au cas d'un RCLFA en écoulement ruisselant et dispersé.

Au même titre que le régime ruisselant et dispersé, nous avons cherché à modéliser et à simuler le régime pulsé naturel. Le problème est qu'à ce jour, nous ne disposons pas encore de la connaissance physique des phénomènes qui nous permettra de le faire. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi de simuler le régime pulsé induit à la place.

Enfin, le transfert de chaleur dans le réacteur à lit fixe monophasique de liquide est traité. Cette étude constitue une ouverture sur la possibilité de mise en œuvre de simulation avec réactions chimiques.

Plan de l'étude

Le premier chapitre de ce travail présente une étude bibliographique des paramètres hydrodynamiques et les paramètres de transfert de matière et de chaleur dans les RCLFA.

Les différentes approches de modélisation en milieu poreux diphasique sont présentées dans le deuxième chapitre. Nous allons nous intéresser plus particulièrement à une approche générale de modélisation des écoulements polyphasiques, à savoir la formulation statistique moyennée (Kashiwa et Rauenzahn, 1994).

Dans le troisième chapitre, la simulation de l'hydrodynamique et le transfert de matière liquide/paroi dans un réacteur à lit fixe et à écoulement monophasique vers le bas de liquide est traitée.

Le chapitre suivant est consacré à la simulation de l'hydrodynamique et du transfert de matière liquide/paroi dans un RCLFA en régime ruisselant et dispersé. Une étude de la distribution du liquide est également abordée.

Le cinquième chapitre traite de la simulation d'un RCLFA en régime pulsé induit (alimentation périodique de liquide). Les propriétés hydrodynamiques de ce régime ainsi que l'effet de l'alimentation périodique de liquide sur le transfert de matière liquide/paroi sont étudiés.

Enfin, le sixième et dernier chapitre porte sur la simulation du transfert de chaleur dans un réacteur à lit fixe monophasique. Les deux modèles, homogène et hétérogène, du transfert thermique sont étudiés et comparés.

Chapitre 1

Généralités et étude bibliographique

Le présent chapitre comporte une étude bibliographique des paramètres hydrodynamiques (régime d'écoulement, perte de charge et saturation liquide) et les paramètres de transfert de matière et de chaleur dans les RCLFA.

1.1 Régimes d'écoulement

Comme pour tout contacteur polyphasique, les RCLFA sont sujets à différents régimes hydrodynamiques ou régimes d'écoulement. Ces régimes traduisent les différents modes de contact des phases gazeuses et liquides au sein du milieu poreux. Les lois des transferts de matière, de chaleur et de quantité de mouvement dépendent naturellement de ces régimes d'écoulement. La connaissance du régime d'écoulement devient alors indispensable pour l'estimation des paramètres des phénomènes de transfert mis en jeu.

1.1.1 Description des régimes d'écoulement

Les régimes d'écoulement les plus couramment cités pour les liquides non inhibiteurs de coalescence, dits non-moussants, ont été décrits par Ng (1986). Ils sont classés en deux catégories : écoulement à faible interaction et écoulement à forte interaction.

La figure 1.1 présente l'évolution des différents régimes d'écoulement en fonction des débits de gaz et de liquide.

Écoulement à faible interaction ou écoulement ruisselant

A faibles débits de fluides, le gaz et le liquide s'écoulent séparément dans le réacteur. Le liquide s'écoule sous forme de films, filets ou gouttes sur les particules solides et le gaz, qui constitue la phase continue, se déplace dans l'espace interstitiel. Dans ce régime, l'interaction entre les deux phases est relativement faible.

Écoulement à forte interaction

L'augmentation des débits de gaz et de liquide accentue les phénomènes d'interaction entre phases. On peut distinguer plusieurs régimes, dont principalement :

- *régime à brouillard* : pour des débits de liquide faibles et à forts débits gazeux, une partie du liquide est entraînée par la phase gazeuse sous forme de gouttelettes et le reste du liquide s'écoule sous forme de film sur les particules ;
- *régime pulsé* : il est observé pour des débits liquides modérés et forts, et des débits gazeux importants ; la colonne est traversée alternativement par des bouchons riches en gaz et des bouchons riches en liquide ;
- *régime à bulles (régime dispersé)* : pour des débits de liquide assez importants, le liquide représente la phase continue et le gaz est dispersé sous forme de bulles. Pour des débits gazeux très faibles les bulles de gaz sont sphériques et on parle de régime à bulles. Lorsqu'on augmente le débit de gaz, les bulles coalescent et deviennent dispersées ; dans ce cas le régime est dit à bulles dispersées ou à bulles déformées.

Les frontières entre ces régimes d'écoulement dépendent des débits du gaz et du liquide, de la nature et de la dimension du garnissage, des propriétés physico-chimiques des fluides, du diamètre de la colonne ainsi que des conditions opératoires (température et pression).

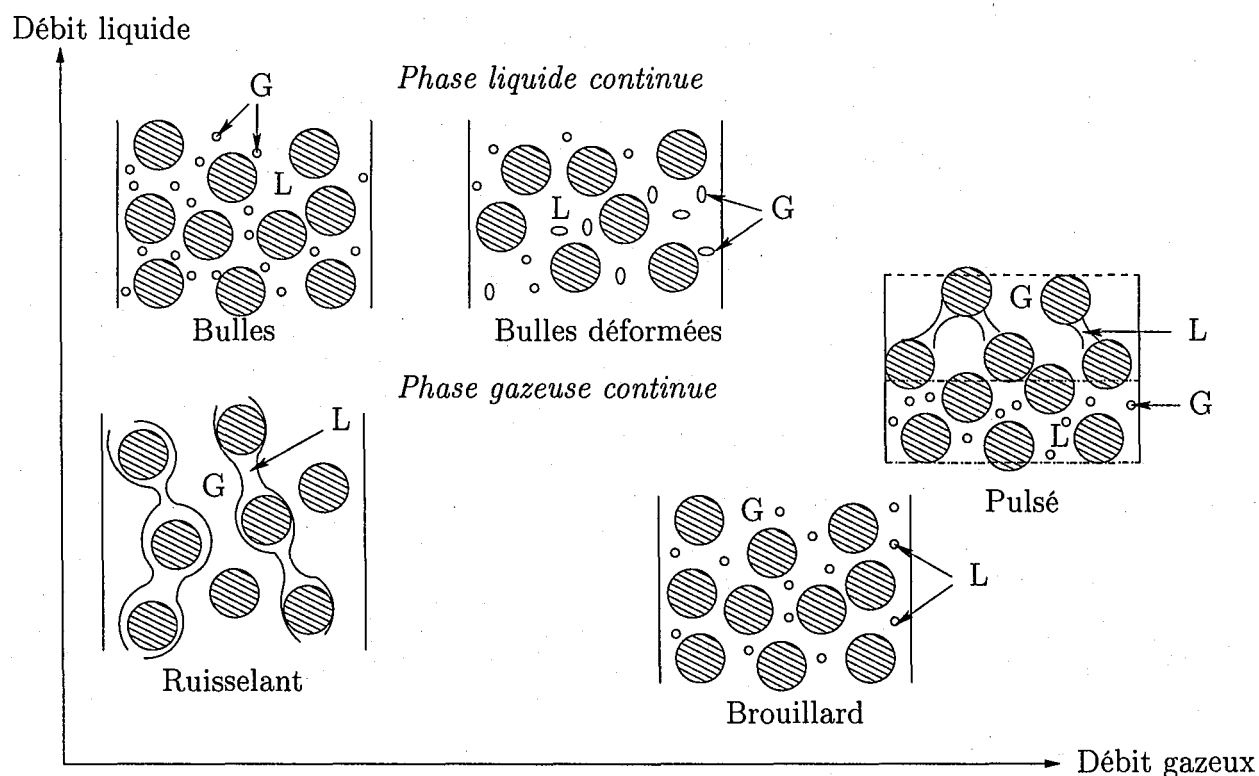


FIG. 1.1 - Régime d'écoulement

1.1.2 Transitions entre les régimes d'écoulement (diagrammes d'écoulement)

Des cartes d'écoulement représentant les transitions entre les différents régimes ont été établies de manière à pouvoir prédire aisément le régime d'écoulement. Les premiers dia-

grammes disponibles représentent le rapport entre les débits de liquide et de gaz (L/G) en fonction du débit gazeux (G) (Turpin et Huntington, 1967). Le problème de cette carte est qu'elle ne tient compte ni des propriétés des phases en écoulement, ni des caractéristiques du solide. Charpentier et Favier (1975) ont modifié ce diagramme à l'aide des coefficients correctifs de Baker (1954) λ et Ψ présentés dans l'équation 1.1. Deux diagrammes d'écoulement sont fournies selon que le liquide est coalescent ou moussant, avec G/λ en abscisses et $L\lambda\Psi/G$ en ordonnées.

$$\lambda = \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_{air}} \cdot \frac{\rho_l}{\rho_{eau}}} \quad \Psi = \frac{\sigma_{eau}}{\sigma_l} \left(\frac{\mu_l}{\mu_{eau}} \left(\frac{\rho_{eau}}{\rho_l} \right)^2 \right)^{0,33} \quad (1.1)$$

Pour des pressions faibles à modérées, ce diagramme représente bien les transitions entre les régimes d'écoulement. Cependant, ce n'est plus le cas à hautes pressions. Pour tenir compte de l'effet de la pression, Larachi (1991) a proposé les équations 1.2 et 1.3 comme modification du diagramme de Charpentier et Favier (1975). Il fait intervenir un coefficient correctif Φ rendant compte de l'effet de la masse volumique du gaz. La masse volumique de l'air est alors prise aux conditions normales de température et de pression. Ce diagramme donne uniquement la transition entre les régimes à faible et forte interactions.

$$\frac{L\lambda\Psi\Phi}{G} = \left(\frac{G}{\lambda} \right)^{-1,25} \quad (1.2)$$

$$\Phi = \frac{1}{4,76 + 0,5 \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{air}}} \quad (1.3)$$

Il est à noter que les transitions entre les différents régimes d'écoulement sont progressives et ne sont jamais brusques. Il s'agit plutôt d'une zone de transition.

1.1.3 Modélisation des transitions entre régimes

Les diagrammes d'écoulement empiriques n'étant pas satisfaisants pour de nombreux auteurs, des essais pour trouver une théorie qui puisse représenter convenablement les changements de régime d'écoulement ont été menés. On distingue deux approches différentes : les modèles microscopiques développés par Ng (1986), Holub (1990) et Melli et Scriven (1991), et le modèle mécanistique proposé par Sundaresan (1987).

- Ng (1986) a voulu relier les phénomènes macroscopiques de transition aux phénomènes à l'échelle des pores entre les grains. Ainsi, des critères ont été développés pour prévoir les transitions entre les régimes.

Dans le cas de la transition ruisselant-pulsé, ce modèle se base sur la description de ce qui se déroule au niveau de l'étranglement entre particules voisines. C'est au niveau de ce rétrécissement que les pulsations sont générées. Du fait que la vitesse du gaz est maximale à cet endroit, les filets de liquide qui ruissellent sur les particules ont tendance à former des ponts. Par contre, les forces de capillarité ont tendance à retenir le liquide sous forme de film. C'est l'effet de ces deux forces opposées qui forme les pulsations.

- En considérant lui aussi que les transitions entre les régimes sont provoquées par des phénomènes microscopiques, Holub (1990) a proposé un modèle permettant de représenter la transition ruisselant-pulsé. Juste avant la transition, Holub (1990) considère que le liquide s'écoule sous forme d'un film laminaire. La transition correspond alors à la perte de stabilité du film liquide. En utilisant le critère de stabilité des films laminaires et en y joignant un modèle hydrodynamique, Holub (1990) arrive à une condition limite de stabilité qui correspond à la transition avec le régime pulsé.
- Un autre type de modèle (Sundaresan, 1987; Grosser et al., 1988; Dankworth et al., 1990) se base sur les équations de continuité et de quantité de mouvement. Ces équations théoriques sont couplées à des équations constitutives empiriques fournissant les forces exercées par les différentes phases. De même que pour Holub (1990), la transition entre les régimes d'écoulement est obtenue en utilisant des critères de stabilité : le système est stable dans le temps tant que l'écoulement est ruisselant.

1.2 Pertes de charge

La connaissance de la perte de charge à travers un réacteur est une donnée fondamentale puisqu'elle permet la conception de l'environnement énergétique (le dimensionnement des pompes et des compresseurs). Deux types de corrélation de perte de charge dans les lits fixes diphasique sont distingués :

Corrélations énergétiques :

Ces relations sont basées sur une approche énergétique. Elles consistent en général à relier la perte de charge diphasique aux pertes de charge monophasiques dans les mêmes conditions opératoires. Dans ce cas, la perte de charge est généralement exprimée en fonction du critère de Lockhart et Martinelli (1949) (équation 1.4) :

$$\chi^2 = \frac{\Delta P_l}{\Delta P_g} \quad (1.4)$$

Ce genre de corrélations a été proposé par Larkins et al. (1961), Sato et al. (1973), Midoux et al. (1976) et Tosun (1984). L'inconvénient principal de ce type de corrélations est justement la nécessité de connaître les pertes de charge en lit fixe monophasique.

Corrélations fondées sur le facteur de frottement :

Ces corrélations relient un facteur de frottement aux nombres adimensionnels caractérisant l'écoulement. En se basant sur les résultats expérimentaux obtenus au LSGC à Nancy pendant plus de 20 ans, Ellman (1988) a établi une corrélation qui distingue entre les régimes d'écoulement à faible et à forte interaction, et qui fait intervenir le facteur de frottement défini comme suit :

$$f_{lg} = \left(\frac{\Delta P/Z}{2G^2} \right)_{gl} d_h \rho_g \quad (1.5)$$

Larachi (1991) et Wammes et al. (1991) ont développé des corrélations pour l'ensemble des régimes d'écoulement basées sur f_{lg} . Enfin, il existe une approche relativement récente qui consiste à utiliser des corrélations du type réseaux de neurones (Iliuta et al. (1998)) qui

s'appuient sur des bases de données multiples avec un domaine d'application très large. Néanmoins, on peut reprocher à ce genre de corrélation de ne pas prendre en compte la physique des phénomènes mis en jeu.

1.3 Saturation du liquide

La saturation du liquide est un paramètre très important pour le dimensionnement et le fonctionnement des lits fixes. Elle est intimement liée à la perte de charge et au transfert de matière et de chaleur. De plus, la fraction du liquide dans le réacteur agit sur l'efficacité de mouillage du catalyseur et donc sur les cinétiques de réactions.

La méthode d'égouttage est l'une des techniques les plus utilisées pour la mesure de la saturation du liquide. Elle consiste à mesurer la quantité de liquide recueillie par égouttage après coupure simultanée des alimentations du gaz et du liquide. Il existe de nombreuses définitions de la saturation du liquide dans un réacteur :

- la *saturation liquide totale* (s_l) correspond au rapport du volume du liquide au volume de vide extragranulaire. Pour le cas de garnissage non poreux, elle sera égale à la saturation dite externe s_e
- la *saturation dynamique* (s_d) est la fraction du liquide qui est recueillie par égouttage après arrêt des alimentations en gaz et en liquide
- la *saturation statique* (s_s) correspond au liquide retenu par capillarité aux jointures des grains après arrêt de l'écoulement et de l'égouttage

Dans le cas de garnissage non poreux, on aura :

$$s_l = s_e = s_d + s_s \quad (1.6)$$

1.3.1 Corrélations

La saturation liquide et la perte de charge sont des paramètres intimement liés. Ils sont souvent étudiés et corrélés selon les mêmes critères. On peut ainsi distinguer deux principaux types de corrélations : celles basées sur les pertes de charge en écoulement monophasique (Midoux et al., 1976) et celles basées sur des nombres adimensionnels caractéristiques (Turpin et Huntington, 1967; Specchia et Baldi, 1977). Saroha et Nigam (1996) et Al-Dahhan et al. (1997) résument les différentes corrélations existantes dans la littérature. Le tableau 1.1 présente trois corrélations relativement récentes de la saturation liquide.

Comme la méthode d'égouttage est largement utilisée pour la mesure de la saturation liquide, de nombreuses corrélations (Specchia et Baldi, 1977; Ellman, 1988; Wammes et Westerterp, 1990) sont établies pour des saturations dynamiques. Afin d'évaluer la saturation totale, il est alors nécessaire d'estimer la saturation statique.

Les corrélations de la saturation statique sont peu nombreuses. La relation la plus couramment utilisée est la corrélation de Saez et Carbonell (1985) qui donne la saturation

statique en fonction du nombre d'Eötvös :

$$E\ddot{o} = \frac{\rho_l g d_p^2 \epsilon^2}{\sigma_l (1 - \epsilon)^2}$$

$$s_s = \frac{1}{\epsilon(20 + 0,9E\ddot{o})} \quad (1.7)$$

TAB. 1.1 – Corrélations de saturation liquide en fonction des pertes de charge

Auteur et conditions d'établissement	Corrélations
Ellman (1988) Gaz : air Liquide : eau, cyclohexane, gasoil, éthylène glycol Solide : 1,16-3,06 mm L=0,5-105 kg/m ² s ; G=10 ⁻⁴ -10 kg/m ² s	$\log(s_d) = 0,001 - \frac{R}{\xi^m}$ $\xi = X_g^n Re_l^p We_l^q \left(\frac{a_c d_h}{1-\epsilon}\right)^v$ Faible interaction $R=0,42 ; m=0,48 ; n=0,5 ; p=0,3 ; q=0 ; v=0,3$ Forte interaction $R=0,16 ; m=0,65 ; n=0,5 ; p=0,25 ; q=0,2 ; v=0,25$
Wammes et Westerterp (1990) Gaz : He, N ₂ Liquide : eau, éthanol, éthylène glycol Solide : sphère verre 1,4,2 mm, cylindres alumine 3,2x3,2 mm L=0,42-4,1 kg/m ² s ; G=0,007-4 kg/m ² s	$s_d = 3,8 \left(\frac{\rho_l u_l d_p}{\mu_l}\right)^{0,55} \left(\frac{a_v d_p}{\epsilon}\right)^{0,65}$ $X \left(\frac{d_p^3 \rho_l^2 g}{\mu_l^2} \left(1 + \frac{\Delta P}{\rho_l g H}\right)\right)^{-0,42}$
Larachi (1991) Gaz : He, N ₂ , Ar, CO ₂ Liquide : eau, éthanol, éthylène glycol Solide : sphère 1,4,2 mm, L=1,8-24,5 kg/m ² s ; G=0,003-3 kg/m ² s	$\log(1 - s_e) = -1,22 \frac{We_l^{t_1}}{X_g^{t_2} Re_l^{t_3}}$ $t_1=0,15 \pm 0,016$ $t_2=0,15 \pm 0,08$ $t_3=0,20 \pm 0,013$

1.4 Transfert de matière

Dans les réacteurs polyphasique à lit fixe, plusieurs techniques expérimentales sont utilisées pour la mesure du coefficient de transfert de matière liquide/solide. On distingue trois grands types de méthodes :

- *Les méthodes chimiques* : Le principe de cette méthode consiste à mettre en oeuvre une réaction chimique en phase liquide au contact d'un catalyseur solide (Morita et Smith, 1978; Herskowitz et Abuelhaija, 1985).
- *Les méthodes physiques* : Le transfert de matière liquide/solide s'effectue en absence de toute réaction chimique (Goto et al., 1975; Hirose et al., 1999; Ruether et al., 1980).
- *Les méthodes électrochimiques* : Cette méthode repose sur la mise en oeuvre d'une réaction électrochimique, dont la vitesse est contrôlée par le transfert de matière sur l'électrode (Latifi, 1988; Naderifar, 1995).

Parmi les réactions utilisées pour la détermination du coefficient de transfert de matière, k_d , par mesures électrochimiques, on peut citer :

- la réduction de l'ion hexacyanoferrate III [$Fe(CN)_6^{3-}$], ou l'oxydation de l'ion hexacyanoferrate II [$Fe(CN)_6^{4-}$] en milieu alcalin ($NaOH$, KOH)
- la réduction de Cu^{++} en Cu en milieu acide sulfurique
- la réduction de O_2 dissout dans KOH
- la réduction de I^{3-} en I^- en milieu iodure de potassium

1.4.1 Corrélations

En régime ruisselant la plupart des études qui se sont intéressées au transfert de matière liquide/solide (particule ou paroi) dans les RCLFA (Goto et al. (1975); Hirose et al. (1999); Ruether et al. (1980); Barthole (1983); Latifi (1988); Rode (1992) et Naderifar (1995)) soulignent l'influence négligeable du débit gazeux sur le flux de transfert. Par contre, Rao et Drinkenburg (1985) notent une légère augmentation du coefficient de transfert de matière avec le débit gazeux, surtout à faible débit liquide et pour des débits gazeux importants.

En revanche, en régime à forte interaction, le coefficient de transfert de matière liquide-solide dépend du débit de liquide et du débit de gaz. Parmi les auteurs qui se sont intéressés au transfert de matière dans ce régime d'écoulement, on peut citer Dharwadkar et Sylvester (1977); Chou et al. (1979); Ruether et al. (1980); Latifi (1988); Lakota et Levec (1990) et Naderifar (1995).

Des exemples de corrélations sont donnés dans le tableau 1.2. La majorité des corrélations sont données sous la forme adimensionnelle suivante :

$$Sh\phi Sc^{-1/3} = a Re_l^b Re_g^c \quad (1.8)$$

TAB. 1.2 – Corrélations de transfert de matière

Auteurs	Corrélations
Goto et al. (1975) liquide/particule	$Sh\phi Sc^{-1/3} = 1,31 Re_l^{0,564}$, $0,2 < Re_l < 20$
Dharwadkar et Sylvester (1977) liquide/particule	$Sh\phi Sc^{-1/3} = 1,637 Re_l^{0,669}$, $0,2 < Re_l < 2400$
Chou et al. (1979) liquide/paroi	Régime Pulsé $\epsilon Sh\phi Sc^{-1/3} = 0,72 Re_l^{0,54} Re_g^{0,16}$, $50 < Re_l < 140$
Ruether et al. (1980) liquide/particule	$\epsilon Sh''\phi Sc^{-1/3} = 0,0819 (Re_l')^{0,777}$, $Re_l' < 50$
Barthole (1983) liquide/paroi	$Sh\phi Sc^{-1/3} = 1,84 Re_l^{0,48}$, $2 < Re_l < 50$ où A est la surface active de l'électrode
Lakota et Levec (1990) liquide/particule	pour tous les régimes s'écoulement $Sh\phi Sc^{-1/3} = 0,487 \left(\frac{Re_l}{(1-\epsilon)s_d} \right)^{0,495}$, $15 < \frac{Re_l}{(1-\epsilon)s_d} < 600$
Naderifar (1995) liquide/paroi	régime ruisselant $Sh\phi Sc^{-1/3} = 1,70 Re_l^{0,62}$ régime dispersé $Sh\phi Sc^{-1/3} = 3,87 \left(\frac{Re_l}{s_l} \right)^{0,47}$

Les différentes corrélations de la littérature (transferts liquide/particule et liquide/paroi) ainsi que leurs domaines de validité, ont été recensées par Naderifar (1995).

1.5 Transfert de chaleur

Plusieurs échelles des phénomènes de transfert de chaleur dans les réacteurs catalytiques à lit fixe et à co-courant vers le bas de gaz et de liquide peuvent être distinguées :

- *l'échelle du pore de la particule* : pour les particules solides poreuses, il peut y avoir un profil de température au sein du grain de catalyseur, notamment lors d'une réaction exothermique ;
- *l'échelle de la particule* : la chaleur générée dans le grain est évacuée vers le fluide au niveau de l'interface ;
- *l'échelle du lit* : la dispersion de la chaleur dans l'ensemble du lit s'effectue par des phénomènes de conduction dans les fluides et le solide, et par convection des fluides en mouvement.

La majorité des études de transfert de chaleur se sont intéressées au transfert à l'échelle du lit.

En tenant compte des différentes échelles de transfert de chaleur évoquées, deux approches sont employées pour décrire le transfert de chaleur, à savoir le modèle homogène et le modèle hétérogène.

1.5.1 Modèle homogène

Le modèle homogène considère le système solide-fluides comme un milieu homogène équivalent avec une température locale unique. Cette approche néglige le gradient de température entre le solide et les fluides. Ainsi, elle est surtout utilisée quand l'écart de température entre le solide et les fluides et entre les deux fluides est faible. C'est le cas quand la réaction chimique est lente ou si la production de chaleur à l'intérieur des grains est faible.

En état stationnaire et en ne prenant en compte que la variation radiale et axiale, on aura une équation de chaleur bidimensionnelle aux dérivées partielles :

$$\dot{m}C_p \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{\partial q_z}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial(rq_r)}{\partial r} = r \cdot \Delta H_r \quad (1.9)$$

où $r \cdot \Delta H_r$ correspond à la chaleur produite par la réaction catalytique et \dot{m} , au débit massique superficiel du fluide équivalent.

Le flux de chaleur dans la direction radiale, q_r et dans la direction axiale, q_z , est exprimé par les équations analogues à l'équation de conduction de chaleur dans un corps homogène (loi de Fourier) :

$$q_r = \Lambda_r \frac{\partial T}{\partial r} \quad \text{et} \quad q_z = \Lambda_z \frac{\partial T}{\partial z}, \quad (1.10)$$

où Λ_r et Λ_z sont appelés conductivités thermiques effectives, respectivement radiale et axiale, du système solide-fluides en écoulement.

Pour résoudre l'équation 1.9, il faut disposer d'une corrélation pour estimer les conductivités thermiques effectives. Dans la suite, on ne va s'intéresser qu'à la conductivité effective radiale qui, pour le cas de réacteurs à lit fixe et à écoulement vers le bas, est plus importante devant la conductivité effective axiale.

Corrélations des conductivités effectives

En écoulement monophasique, la conductivité thermique équivalente du lit est donnée par la somme de deux termes (équation 1.11) (Kaviany, 1991) :

$$\Lambda_r = \lambda_{s0} + \lambda_{rf}. \quad (1.11)$$

Le premier, λ_{s0} , représente le terme de conduction de chaleur dans le lit rempli de fluide stagnant (donc indépendant de la vitesse de fluide), et le deuxième, λ_{rf} , exprime le transport convectif par dispersion radiale du fluide.

Cette approche est généralement étendue aux écoulements dans les réacteurs diphasiques à lit fixe, en additionnant la contribution de la phase gazeuse au transfert de chaleur λ_{rg} (équation 1.12) :

$$\Lambda_r = \lambda_{s0} + \lambda_{rl} + \lambda_{rg} \quad (1.12)$$

La plupart des auteurs utilisent la méthode de Zehner et Schlünder (1970) pour estimer λ_{s0} . Cependant quelques auteurs, comme Specchia et Baldi (1979) ou Chu et Ng (1985) proposent leur propre méthode de calcul.

Le transfert de chaleur dépend fortement de l'hydrodynamique, particulièrement des régimes d'écoulement. Un grand nombre d'auteurs distinguent le régime à faible interaction du régime à forte interaction pour établir leurs corrélations.

Le tableau 1.3 présente quelques corrélations de la conductivité thermique effective.

TAB. 1.3 – Corrélations de la conductivité thermique effective en RCLFA

Auteurs et domaines de validité	Corrélations
Weekman et Myers (1965) Système : air-eau $Re_g = 27-407$; $Re_l = 32-193$ $D_c/d_p = 12-20$	$\frac{\Delta_r}{\lambda_l} = \frac{12,17}{\lambda_l} + 0,000285 Re_l^{**} Pr_l$ où $Re_l^{**} = \frac{D_c \rho_l u_l}{s_l \mu_l \epsilon}$
Hashimoto et al. (1976) Système : air-eau, sol. aqueu. de glycérol $Re_g = 23-336$; $Re_l = 0-196$ $D_c/d_p = 15-28$	$\frac{\Delta_r}{\lambda_l} = \frac{0,465}{\lambda_l} + \alpha Re_l Pr_l + 0,110 \frac{\rho_g u_g C_{pg}^* d_p}{\lambda_l}$ $\alpha = \left[\frac{1}{1,9 + 0,0264 d_e \rho_l u_l / (\epsilon s_l \mu_0)} + 0,197 \right] \frac{d_e}{d_p}$ $\mu_0 \text{ viscosité de l'eau à } 15^\circ\text{C}$ $d_e = \frac{\epsilon D_c}{1 + 1,5(1-\epsilon) D_c/d_p}$
Specchia et Baldi (1979) Système : air-eau $Re_g = 0-896$; $Re_l = 42-289$ $D_c/d_p = 11-23$	$\frac{\Delta_r}{\lambda_l} = \frac{\lambda_{s0}}{\lambda_l} + \frac{\lambda_{rl}}{\lambda_l} + \frac{\rho_g u_g C_{pg}^* d_p}{K \lambda_l} \text{ avec } C_{pg}^* = \frac{\Delta H}{\Delta T}$ $\frac{\lambda_{s0}}{\lambda_l} = \epsilon + \frac{(1-\epsilon) \lambda_g / \lambda_l}{0,22 \epsilon^2 + (2 \lambda_g) / (3 \lambda_s)}$ $K = 8,85 \left[1 + 19,4 \left(\frac{d_p}{D_c} \right)^2 \right]$ Régime ruisselant $\frac{\lambda_{rl}}{\lambda_l} = 24,4 (\epsilon s_l)^{0,87} Re_l^{0,13} Pr_l$ Régime à forte interaction $\frac{\lambda_{rl}}{\lambda_l} = \frac{0,003}{(\epsilon s_l)^{0,29}} Re_l^{0,325} Pr_l \left(\frac{a_t d_p}{\epsilon} \right)^{2,7}$
Chu et Ng (1985) Modèle théorique	$\frac{\Delta_r}{\lambda_l} = \frac{\lambda_{s0}}{\lambda_l} + 0,167 Re_l Pr_l \text{ en régime ruisselant}$
Lamine et al. (1996) Système : azote-eau $Re_g = 0-80$; $Re_l = 1-113$ $D_c/d_p = 8-50$	$\frac{\Delta_r}{\lambda_l} = \frac{\lambda_{s0}}{\lambda_l} + 0,9 \frac{Re_l Pr_l}{\xi s_l} + 0,9 \frac{Re_g Pr_g}{\xi (1-s_l)}$ $\xi = \xi_{r\infty} \left[2 - \left(1 - \frac{2d_p}{D_c/d_p} \right)^2 \right] \text{ en régime ruisselant}$ $\xi_{r\infty} \text{ correspond à la dispersion de chaleur}$ quand $r \rightarrow \infty$ $\xi_{r\infty} = 8 \text{ pour les particules sphériques}$ $\xi_{r\infty} = 4,6 \text{ pour des cylindres pleins}$

1.5.2 Modèle hétérogène

Ce modèle prend en compte les différentes températures de chaque phase (fluides et solide), ainsi que le flux de chaleur échangé entre ces différentes phases. Le bilan d'énergie sur un élément différentiel est effectué pour chaque phase et conduit à un système d'équations aux dérivées partielles. La solution de ce système couplé nécessite un traitement considérable et complexe. De plus, sa résolution nécessite énormément de paramètres. Il est par ailleurs rare que l'on dispose de la totalité de ces paramètres.

Pour le côté expérimental, on peut souligner aussi la difficulté de trouver une méthode de mesure valable de température du solide et des fluides. Par conséquent, très peu d'études ont été effectuées sur les coefficients de transfert de chaleur particule-fluide dans les réacteurs à lit fixe diphasique.

Néanmoins, de nombreux auteurs ont étudié le transfert de chaleur à un solide isolé dans un flux de liquide (Whitaker, 1972; Gnielinski, 1983; Del Pozo, 1992), qui par la suite est étendu au cas des lits fixes en écoulement monophasique.

Le tableau 1.4 donne quelques corrélations du coefficient de transfert de chaleur en écoulement monophasique.

TAB. 1.4 – Corrélations du coefficient de transfert de chaleur en écoulement monophasique

Auteurs et conditions d'établissement	Corrélations
Rowe et Claxton (1965) Sphère : $d_p=38$ mm ; $0,26 < Pr < 0,476$	$Nu = \frac{2}{1-(1-\epsilon)^{1/3}} + \frac{2}{2\epsilon} 0,528 Re^n Pr^{1/3}$ $n = \frac{2+4,65Re^{-0,28}}{3(1+4,65Re^{-0,28})}$
Whitaker (1972) Plusieurs types de particules ; $R > 50$	$Nu = 2 + (0,4Re^{0,192} + 0,06Re^{2/3}) Pr^{0,4} (\mu_l / \mu_{eau})^{1/4}$
Gupta et al. (1974) Banque de données ; Gaz seul $Pr=0,7$; $1,8 < d_p < 38$ mm	$\epsilon \vartheta = \frac{2,876}{Re} + \frac{0,3023}{Re^{0,35}}$ avec $\vartheta = \frac{h}{C_{pg} G} \left\{ \frac{\mu_g C_{pg}}{\lambda_g} \right\}^{2/3}$
Gnielinski (1983) Banque de données Sphère : $2 < d_p < 38$ mm $0,6 < Pr < 11500$	$Nu = (1 + 1,5(1 - \epsilon)) Nu_{sph}$ où $Nu_{sph} = 2 + \sqrt{Nu_{lam}^2 + Nu_{turb}^2}$ avec $Nu_{lam} = 0,664 Pr^{1/3} \sqrt{Re}$ et $Nu_{turb} = \frac{0,037 Re^{0,8} Pr}{1 + 2,443 Re^{-0,1} (Pr^{2/3} - 1)}$
Kuwahara et al. (2001) Modèle théorique	$\frac{h_{sf} D_s}{\lambda_f} = \left(1 + \frac{4(1-\epsilon)}{\epsilon} \right) + 1/2(1 - \epsilon)^{1/2} Re^{0,6} Pr^{1/3}$ D_s dimension caractéristique du modèle

Comme il y a un manque d'études du transfert de chaleur dans les réacteurs à lit fixe diphasique, le coefficient de transfert de chaleur est calculé par analogie avec le coefficient de transfert de matière. On peut citer l'analogie la plus utilisée à savoir celle de Chilton et Colburn :

$$Sh Sc^{-1/3} = Nu Pr^{-1/3} \quad (1.13)$$

Néanmoins, il faut noter que ces analogies donnent des résultats peu précis (Latifi et al. (1994)).

Mais ces dernières années, même si elles sont peu nombreuses, des études de mesures de transfert de chaleur en réacteur gaz/liquide à lit fixe ont été menées. On peut notamment citer les travaux suivants :

- Marcandelli (1999) et Marcandelli et al. (1999) ont effectué des mesures locales du coefficient de transfert de chaleur particule-fluide en utilisant des thermistances de taille semblable à la taille des particules ; leurs travaux ont donné lieu à une

corrélation adimensionnelle faisant intervenir le nombre de Nusselt, $\frac{hd_p}{\lambda_l}$, et le nombre de Froude, $\frac{u_l^2}{gd_p s_l^2}$ (Eq. 1.14).

$$\frac{hd_p}{\lambda_l} = 118 \left[\frac{u_l^2}{gd_p s_l^2} \right]^{0,498} \quad (1.14)$$

- Boelhouwer et al. (2001a) ont utilisé une sonde en cuivre, de même forme et taille que les particules, à l'intérieur de laquelle une source génératrice de chaleur est installée. Leurs mesures sont corrélées par l'équation 1.15.

$$Nu = \frac{hd_h}{\rho_l} = 0,111 Re_l^{0,8} Pr^{1/3} \quad (1.15)$$

La plupart des études ont employé le modèle homogène pour décrire le transfert de chaleur dans les RCLFA. Le faible nombre d'études par une approche hétérogène est principalement dû au fait que des limitations thermiques sont assez peu rencontrées dans ce type de réacteur.

1.6 Conclusion

Dans ce chapitre, les différents phénomènes de transfert mis en jeu dans les RCFLA ont été présentés. Les corrélations des paramètres de transfert de matière, de chaleur et de quantité de mouvement sont ainsi données.

Dans ce qui suit, les différentes approches de modélisation et de simulation des milieux poreux en général et tout particulièrement des RCLFA sont exposées.

Chapitre 2

Modélisation des écoulements en milieu poreux

Deux principales démarches peuvent être envisagées pour décrire les transferts en milieu poreux :

1. Assimiler le milieu poreux à un milieu continu et rechercher des relations phénoménologiques de la même manière que pour un milieu continu. Par exemple, la loi de Darcy est utilisée pour calculer la vitesse de filtration à partir du gradient macroscopique de pression dans le milieu.
2. Connaître les lois physiques au niveau microscopique (équation de Navier-Stokes), et procéder à un changement d'échelle par une méthode de prise de moyenne. On obtient alors les équations "moyennées" pour le milieu poreux.

Dans ce chapitre on va s'intéresser à la deuxième démarche de modélisation. Pour ce faire, on va exposer quelques principes généraux de la méthode de prise de moyenne et son application aux cas de lits fixes monophasique et diphasique. De plus, on va recenser les différentes approches de modélisation en milieu poreux diphasique. On va s'intéresser plus particulièrement à une approche générale de modélisation des écoulements polyphasiques, à savoir la formulation statistique moyennée de Kashiwa et Rauenzahn (1994).

2.1 Prise de moyenne en milieux poreux

Parmi les échelles spatiales qui peuvent exister dans un milieu poreux, on peut citer par ordre croissant :

- l'échelle microscopique appelée aussi l'échelle du pore
- l'échelle mésoscopique ou homogène (pore + particule)
- l'échelle macroscopique qui est l'échelle du lit ou de la colonne

Comme on n'a généralement pas accès aux grandeurs microscopiques (pression, vitesse, fraction volumique), on a recours au changement d'échelle qui peut être effectué à l'aide de plusieurs techniques. Les méthodes d'homogénéisation (Khuzhayorov et al., 2000; Auriault et al., 2002) et de prise de moyenne (Whitaker, 1967) sont parmi les techniques les plus utilisées.

À l'échelle microscopique, un processus physique comme l'écoulement en milieu poreux, est caractérisé par une forte hétérogénéité. La méthode d'homogénéisation permet d'obtenir un comportement continu et homogène du système par le moyen de changement d'échelle. La méthode d'homogénéisation ne peut être appliquée que dans le cas où l'hétérogénéité du système étudié est suffisamment importante, c'est le cas des écoulements en milieu poreux. Néanmoins, cette méthode ne sera pas utilisée dans notre étude.

La prise de moyenne consiste à exprimer les équations de conservation et les différentes grandeurs à l'échelle homogène : dans cette échelle, le milieu poreux est considéré comme un continuum uniforme à l'échelle macroscopique. Ainsi, les différentes grandeurs (vitesse, pression, porosité...) sont exprimées par des fonctions continues et relativement régulières, alors qu'à l'échelle microscopique, ces mêmes grandeurs sont très variables, voire discrètes.

2.1.1 Forme générale d'une loi de conservation à l'échelle microscopique

Pour une phase fluide de masse volumique ρ , l'équation de conservation de l'extensité ψ à l'échelle microscopique s'écrit :

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t}(\rho\psi)}_{(1)} + \underbrace{\vec{\nabla}(\rho\vec{u}\psi)}_{(2)} = \underbrace{\vec{\nabla} \cdot (\rho\alpha\vec{\nabla}\psi)}_{(3)} + \underbrace{\sigma}_{(4)} \quad (2.1)$$

(1) est la variation de l'extensité ψ contenue dans une unité de volume en fonction du temps

(2) transport convectif dans le mouvement d'ensemble à vitesse \vec{u}

(3) transport diffusif, α la diffusivité correspondante

(4) terme source par unité de volume

Equation de continuité

L'équation de conservation de la masse est obtenue en posant $\psi = 1$. En l'absence de terme source ($\sigma = 0$), l'équation de continuité s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho\vec{u}) = 0 \quad (2.2)$$

Equation de mouvement

En se limitant au cas d'un fluide newtonien, on vérifiera que l'on trouve les trois équations de mouvement en posant respectivement $\psi = u_i$ où u_i ($i = 1, 2, 3$) sont les trois composantes du vecteur vitesse, $\alpha = \nu$ la viscosité cinématique du fluide et $\sigma_i = \rho f_i - \frac{\partial p}{\partial x_i}$ où f_i est la densité massique des forces extérieures et p la pression statique du fluide.

Equation d'énergie

La forme usuelle du bilan d'énergie thermique (énergies de pression et de dissipation visqueuse négligées) est aisément obtenue en posant :

- $\psi = h$, enthalpie massique du milieu définie par $dh = c_p dT$. où c_p est la chaleur massique à pression constante et T la température.
- $\alpha = \frac{\lambda}{\rho c_p}$ la diffusivité thermique du milieu. λ étant sa conductivité thermique.
- $\sigma = 0$ (en absence de réactions chimiques).

L'application de la méthode de prise de moyenne aux équations de continuité et de quantité de mouvement à l'échelle microscopique, conduit à des équations macroscopiques qui dépendent uniquement de grandeurs macroscopiques : les vitesses, la pression et les fractions volumiques, qui sont moyennées sur un volume élémentaire représentatif.

2.1.2 Généralités sur la prise de moyenne en milieu poreux

Supposons un milieu poreux constitué d'une phase solide et de phases fluides. Les équations de conservations microscopiques sont moyennées sur un Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R.) (Fid. 2.1), qui est défini de façon à respecter la condition ci-dessous : (Whitaker, 1967; Gray, 1975; Gray et O'Neill, 1976; Cheng, 1978)

$$D \ll l \ll H$$

où

- D est la distance au-dessus de laquelle la grandeur physique ψ varie d'une façon significative
- l est une longueur caractéristique du V.E.R.
- H est une longueur caractéristique du système global

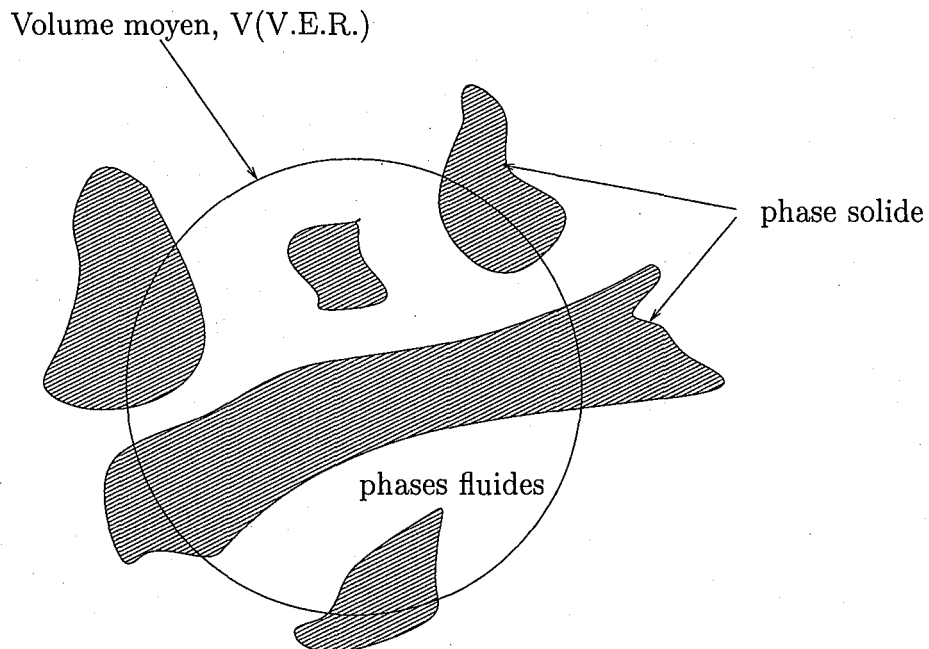


FIG. 2.1 - Schéma d'un volume élémentaire représentatif

Soit ψ_α une grandeur physique définie sur la phase α . Sa moyenne sur le volume élémentaire représentatif V(V.E.R) est donnée par :

$$\langle \psi_\alpha \rangle = \frac{1}{V} \int_V \psi_\alpha dV \quad (2.3)$$

On définit également une moyenne $\langle \psi_\alpha \rangle^\alpha$ dite intrinsèque à la phase α :

$$\langle \psi_\alpha \rangle^\alpha = \frac{1}{V_\alpha} \int_{V_\alpha} \psi_\alpha dV \quad (2.4)$$

soit :

$$\langle \psi_\alpha \rangle = \theta_\alpha \langle \psi_\alpha \rangle^\alpha, \quad (2.5)$$

où θ_α est la fraction volumique de la phase α

$$\theta_\alpha = \frac{V_\alpha}{V}$$

Les équations microscopiques sont moyennées par le biais de deux relations issues du théorème de prise de moyenne (Whitaker, 1973) :

$$\frac{1}{V} \int_V \nabla \psi_\alpha dV = \vec{\nabla} \langle \psi_\alpha \rangle + \frac{1}{V} \int_{S_{\alpha\beta}} \psi_\alpha \vec{n}_\alpha dS \quad (2.6)$$

$$\frac{1}{V} \int_V \nabla \cdot \psi_\alpha dV = \nabla \cdot \langle \vec{\psi}_\alpha \rangle + \frac{1}{V} \int_{S_{\alpha\beta}} \vec{\psi}_\alpha \cdot \vec{n}_\alpha dS, \quad (2.7)$$

où \vec{n}_α est la normale externe à la surface $S_{\alpha\beta}$ correspondant à l'interface des phases α et β .

Par soucis de simplification, nous allons enlever les crochets pour les différentes grandeurs moyennées. Dans la suite de ce chapitre, nous considérons les grandeurs sans crochets comme étant des grandeurs moyennées sur le V.E.R. ; par exemple on a $\langle u \rangle = u$ et $\langle p \rangle = p$.

2.1.3 Prise de moyenne en milieu poreux monophasique

En écoulement monophasique, l'application de la méthode de prise de moyenne à l'équation de continuité et de conservation de quantité de mouvement à l'échelle microscopique (équation de Navier-Stokes) conduit aux équations qui dépendent uniquement des grandeurs macroscopiques : la vitesse et la pression moyennées sur un volume élémentaire représentatif (V.E.R).

L'équation de continuité moyennée dans le cas où il n'existe pas de terme source, est donnée sous la forme :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \rho u = 0. \quad (2.8)$$

Pour l'équation de quantité de mouvement, Vafai et Tien (1981) ont appliqué cette méthode pour obtenir les équations moyennées en utilisant la pression interstitielle, $p^\alpha = \epsilon p$:

$$\underbrace{\rho_\alpha \frac{\partial \vec{u}}{\partial t}}_{(1)} + \underbrace{\nabla \cdot (\rho_\alpha \vec{u} \cdot \vec{u})}_2 = \underbrace{-\nabla p^\alpha}_{(3)} + \underbrace{\rho_\alpha \vec{g}}_{(4)} + \underbrace{\frac{\mu_f}{\epsilon} \nabla^2 \vec{u}}_{(5)} - \underbrace{\frac{\mu_\alpha}{K_\alpha} \vec{u}}_{(6)} - \underbrace{\frac{I_f \epsilon}{\sqrt{K_\alpha}} \rho_\alpha |\vec{u}| \vec{u}}_{(7)} \quad (2.9)$$

Hsu et Cheng (1990) ont eux utilisé la pression superficielle, p , dans leur formulation et ont obtenu les équations suivantes :

$$\underbrace{\rho_\alpha \frac{\partial \vec{u}}{\partial t}}_{(1)} + \underbrace{\nabla \cdot (\rho_\alpha \vec{u} \cdot \frac{\vec{u}}{\epsilon})}_{(2)} = \underbrace{-\nabla p}_{(3)} + \underbrace{\rho_\alpha \epsilon \vec{g}}_{(4)} + \underbrace{\mu_f \nabla^2 \vec{u}}_{(5)} - \underbrace{\frac{\mu_\alpha \epsilon}{K_\alpha} \vec{u}}_{(6)} - \underbrace{\frac{I_f \epsilon}{\sqrt{K_\alpha}} \rho_\alpha |\vec{u}| \vec{u}}_{(7)} \quad (2.10)$$

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

Les termes 1 – 7 de ces équations ont la signification suivante :

- (1) terme transitoire
- (2) forces inertielles macroscopiques
- (3) gradient de pression
- (4) forces de gravité
- (5) diffusion de la contrainte macroscopique visqueuse de cisaillement
- (6) contrainte visqueuse de cisaillement ou terme de Darcy
- (7) forces inertielles. Il est dit terme inertiel de Forcheimer ou d'Ergun

K_α est la perméabilité du milieu poreux et I_f est dit coefficient de Forcheimer et donné par :

$$I_f = \frac{1.75}{\sqrt{150\epsilon^{3/2}}} \quad (2.11)$$

En régime permanent, en écoulement établi et à vitesse modérée, seul le terme de contrainte visqueuse est à retenir, les autres termes sont négligeables devant le terme visqueux. Cela constitue la loi trouvée expérimentalement par Darcy, dès 1856, dans son célèbre traité sur "les fontaines publiques de la ville de Dijon" :

$$\nabla P = \frac{\mu_\alpha}{K_\alpha} u \quad (2.12)$$

2.2 Modélisation et simulation en milieu poreux diphasique

Il existe différentes approches pour modéliser les écoulements en milieu poreux diphasique. La plus "classique" est basée sur les principes fondamentaux de la mécanique des fluides. Elle consiste à utiliser les équations de continuité et de quantité de mouvement moyennées dans l'espace, associées à des modèles de fermeture exprimant les forces d'interactions entre phases.

Des exemples de modèles utilisant l'approche de mécanique des fluides, ainsi que d'autres modèles différents par la démarche et le principe sont présentés dans ce qui va suivre.

Par ailleurs, une nouvelle approche différente par le principe et la forme à savoir la formulation statistique moyennée sera traitée dans le paragraphe suivant (paragraphe 2.3).

2.2.1 Approche "classique" (mécanique des fluides)

Pour décrire le comportement des différentes phases présentes en RCLFA, des équations de continuité et de quantité de mouvement moyennées dans l'espace, associées à des lois phénoménologiques représentant les forces d'interactions entre phases (forces de traînées), sont utilisés.

Dans un milieu poreux diphasique, en écoulement permanent incompressible, et pour des fluides newtoniens, Saez et Carbonell (1985) ont défini l'équation moyennée de transfert de quantité de mouvement en utilisant des grandeurs intrinsèques de la phase telles que u_α , p_α , ϵ_α . Cette équation s'écrit :

$$\epsilon_\alpha \rho_\alpha u_\alpha \cdot \nabla u_\alpha = \epsilon_\alpha \nabla \hat{p}_\alpha - F_\alpha + \mu_\alpha \nabla^2 u_\alpha \quad (\alpha = l, g) \quad (2.13)$$

F_α représente la résultante des forces exercées par la phase α sur les autres phases. Pour modéliser le terme des forces de traînée ou d'interaction entre phases, plusieurs modèles ont été utilisés :

- le modèle de perméabilité relative (Saez et Carbonell, 1985)
- le modèle des deux fluides (Attou et al., 1999)

Modèle de perméabilité relative

En utilisant le concept de perméabilité relative, Saez et Carbonell (1985) ont déterminé une expression pour F_α :

$$\frac{F_\alpha}{\epsilon_\alpha} = \frac{1}{k_{r\alpha}(s_\alpha)} \left(A \frac{Re_\alpha}{Ga_\alpha} + B \frac{Re_\alpha^2}{Ga_\alpha} \right) \rho_\alpha g, \quad (2.14)$$

où A et B sont les constantes de l'équation d'Ergun, $k_{r\alpha}$ la perméabilité relative et s_α la saturation de la phase α

L'inconvénient principal de ce modèle est qu'il ne tient pas compte des forces d'interaction fluide-fluide. C'est pour cette raison qu'il ne peut être utilisé que pour les régimes d'écoulement à faibles interactions (ruisselant).

Pour tenir compte des effets d'interaction gaz-liquide dans le cas de saturations liquides importantes, Dankworth et al. (1990) ont modifié l'expression des forces exercées sur le gaz et le liquide (F_α) donnée par Saez et Carbonell (1985). Les équations résultantes sont :

$$F_g = \left(A \frac{\mu_g (1 - \epsilon)^2 \epsilon^{1,8}}{d_e^2 \epsilon_g^{2,8}} + B \frac{\rho_g (1 - \epsilon) \epsilon^{1,8}}{d_e \epsilon_g^{1,8}} |u_g - u_l| \right) (u_g - u_l) \quad (2.15)$$

$$F_l = \left(\frac{\epsilon - \epsilon_l^r}{\epsilon_l - \epsilon_l^r} \right)^{2,43} \left(A \frac{\mu_l (1 - \epsilon)^2 \epsilon_l^2}{d_e^2 \epsilon^3} + B \frac{\rho_l (1 - \epsilon) \epsilon_l^3}{d_e \epsilon^3} |u_l| \right) u_l - F_g \quad (2.16)$$

où d_e est le diamètre équivalent des particules non sphériques et ϵ_l^r est la fraction volumique résiduelle liquide.

Modèle de deux fluides

Attou et al. (1999) ont tenu compte des interactions fluide-fluide, en plus de celles existantes entre le fluide et le solide, pour exprimer la résultante des forces exercées sur la phase α (F_α). Les interactions gaz-solide et liquide-solide sont données sous la forme générale suivante :

$$F_{\alpha s} = A_{\alpha s} U_\alpha + B_{\alpha s} (U_\alpha)^2 \quad (2.17)$$

$A_{\alpha s}$ et $B_{\alpha s}$ représentent une modification des constantes d'Ergun qui dépendent de la distribution des deux fluides ; U_α est la vitesse superficielle du fluide α .

En outre, les forces de traînée résultantes de l'interaction gaz-liquide sont exprimées comme suit :

$$F_{lg} = A_{lg} U_r + B_{lg} (U_r)^2, \quad (2.18)$$

où U_r est la vitesse relative entre le gaz et le liquide qui est fonction des vitesses des deux phases fluides et du rapport de saturation gaz/liquide ($\frac{s_g}{s_l}$) :

$$U_r = U_g - \left(\frac{s_g}{s_l} \right) U_l.$$

En plus de ces différents modèles, une autre approche basée sur les équations de conservation moyennées a été développée pour décrire l'écoulement dans un RCLFA. Cette approche, appelée, formulation pression-saturation, est détaillée ci-dessous.

Formulation pression-saturation

Les équations de continuité et de quantité de mouvement moyennées dans les réacteurs gaz/liquide à lit fixe ont été reformulées par Propp (1998) en deux équations : l'équation de pression et l'équation de saturation en utilisant la loi de Darcy généralisée et la définition de la pression capillaire ($p_c = p_g - p_l$).

Hypothèses simplificatrices

- la porosité ne varie pas au cours du temps ;
- les deux fluides sont incompressibles ;
- la vitesse est supposée décrite par la loi de Darcy généralisée.

Reformulation des équations

En tenant compte des hypothèses décrites ci-dessus, les équations de continuité pour chacune des deux phases fluides sont données comme suit :

$$\epsilon \frac{\partial s_l}{\partial t} + \nabla \cdot u_l = 0 \quad (2.19)$$

$$\epsilon \frac{\partial s_g}{\partial t} + \nabla \cdot u_g = 0 \quad (2.20)$$

avec

$$s_l + s_g = 1 \quad (2.21)$$

En sommant les équations 2.19 et 2.20 et en tenant compte de la contrainte sur la saturation (équation 2.21) nous obtenons :

$$\nabla \cdot (u_l + u_g) = 0 \quad (2.22)$$

Comme énoncé dans les hypothèses du problème, la vitesse pour chacune des phases fluides est donnée par la loi de Darcy généralisée :

$$u_i = -\frac{K_i k_{ri}}{\mu_i} \cdot [\nabla p_i - \rho_i g] \quad (2.23)$$

En remplaçant u_i (Eq. 2.23) dans 2.22 et en utilisant la pression capillaire ($p_c = p_g - p_l$), on obtient :

$$\nabla \cdot ((\gamma_l + \gamma_g) \cdot \nabla p_g) = \nabla \cdot ((\gamma_l \rho_l + \gamma_g \rho_g) \cdot \nabla p_g) + \nabla \cdot (\gamma_l \cdot \nabla p_c) \quad (2.24)$$

où

$$\gamma_l = K_l \left(\frac{k_{rl}}{\mu_l} \right)$$

et

$$\gamma_g = K_g \left(\frac{k_{rg}}{\mu_g} \right)$$

Où K_l et K_g sont les perméabilités intrinsèques du milieu poreux respectivement du liquide et du gaz. Alors que, k_{rl} et k_{rg} sont les perméabilités relatives, qui expriment la facilité d'une phase à circuler en présence de l'autre.

L'équation 2.24 est la première équation relative à la pression qu'il faut résoudre.

La deuxième équation relative à la saturation est obtenue comme suit :

on définit une vitesse totale, qui est la somme des vitesses des deux phases, pour éliminer le terme de vitesse liquide u_l dans l'équation de saturation.

$$u_T = u_g + u_l \quad (2.25)$$

De la même manière que l'équation 2.24 (loi de Darcy et définition de la pression capillaire) on obtient l'expression de la vitesse de la phase liquide.

$$u_l = \frac{\gamma_l}{\gamma_l + \gamma_g} u_T + \frac{\gamma_l \gamma_g}{\gamma_l + \gamma_g} \nabla p_c - \frac{\gamma_l \gamma_g}{\gamma_l + \gamma_g} (\rho_g - \rho_l) g \quad (2.26)$$

Finalement en substituant l'expression de la vitesse de la phase liquide (équation 2.26) dans l'équation de continuité de la phase liquide (équation 2.19) on obtient la deuxième équation relative à la saturation liquide.

$$\epsilon \frac{\partial s_l}{\partial t} + \nabla \cdot (F) = \nabla \cdot [H \cdot p_c] \quad (2.27)$$

où

$$F = \frac{\gamma_l}{\gamma_l + \gamma_g} u_T - \frac{\gamma_l \gamma_g}{\gamma_l + \gamma_g} (\rho_g - \rho_l) g$$

$$u_T = (\gamma_l + \gamma_g) \nabla p_g - (\gamma_l \rho_l + \gamma_g \rho_g) g + \gamma \nabla p_c$$

$$H = \frac{\gamma_l \gamma_g}{\gamma_l + \gamma_g}$$

Pour la fermeture du système, Propp (1998) a utilisé, que ce soit pour la pression capillaire ou les perméabilités, les mêmes équations que celles utilisées par Saez et Carbonell (1985).

Pour résoudre le couple d'équations (pression-saturation), Propp (1998) a mis au point un code de calcul qui permet de déterminer les champs de pression et de saturation. Il a utilisé une discrétisation en différences finies et un maillage adaptatif pour réduire le temps de calcul et améliorer la qualité de la solution. En outre, la méthode du flux de Goudunov a été employée pour résoudre le problème de discontinuité dans les fronts de propagation de saturation.

L'algorithme résout en premier lieu l'équation de pression par une méthode itérative puis l'équation de saturation, qui est discrétisée selon un schéma de Cranck-Nicolson, en utilisant la combinaison de la méthode de Goudunov et une méthode itérative. La résolution de ces deux équations forme la base de l'algorithme prédicteur-correcteur séquentiel.

Propp (1998) s'est intéressé uniquement à l'aspect numérique du problème, alors que Souadnia (2000) a comparé les résultats de la simulation avec des résultats expérimentaux. Souadnia (2000) et Souadnia et Latifi (2001) ont utilisé la même formulation (pression-saturation), sauf que la discrétisation du système est faite suivant un schéma de volumes finis et la distribution de porosité est supposée soit uniforme ou décrite par la relation de Vortmeyer et Schuster (1983). En utilisant des techniques numériques particulières de type méthode du flux de Godunov, le problème de la gestion du front de saturation a en particulier été résolu par Souadnia (2000) et Souadnia et Latifi (2001). Néanmoins, le modèle ne représente pas correctement l'écoulement à la paroi du réacteur dans le cas de la prise en compte du profil de porosité. Par ailleurs, cette formulation n'est valable que dans le cas d'un écoulement à faibles interactions.

2.2.2 Autres approches

Modèle du tube incliné (slit model)

Au lieu d'utiliser l'équation de mouvement moyennée pour le gaz et le liquide (Eq. 2.13), Holub (1990) et Holub et al. (1992) ont développé un modèle purement théorique. L'écoulement dans les pores est modélisé par un écoulement de gaz et de liquide dans un tube incliné. Le liquide est considéré comme recouvrant totalement la surface du solide, sous forme d'un film d'épaisseur constante, alors que le gaz s'écoule au centre du tube. Le modèle suppose que le diamètre du tube est directement liée à la porosité du lit et que la rétention liquide dépend de la largeur du film liquide. En utilisant ces hypothèses, Ils ont aboutit au système d'équation suivante :

$$\Psi_\alpha = \frac{1}{\rho_\alpha g} \left(-\frac{\Delta p}{H} + \rho_\alpha g \right) \quad (\alpha = l, g) \quad (2.28)$$

$$\Psi_g = \left(\frac{\epsilon}{\epsilon - \theta_l} \right)^3 \left(A \frac{Re_{eg} - f_s(\epsilon - \theta_l) Re_i}{Ga_g} + B \frac{(Re_{eg} - f_v(\epsilon - \theta_l) Re_i)^2}{Ga_g} \right) \quad (2.29)$$

$$\Psi_l = \left(\frac{\epsilon}{\theta_l} \right)^3 \left(A \frac{Re_{el}}{Ga_l} + B \frac{Re_{el}^2}{Ga_l} \right) + f_s \frac{(\epsilon - \theta_l)}{\theta_l} \left(1 - \frac{\rho_g}{\rho_l} - \Psi_l \right) \quad (2.30)$$

Avec :

$$Re_{\epsilon\alpha} = \frac{\rho_\alpha U_\alpha d_p}{\mu_\alpha (1 - \epsilon)} \quad (\alpha = l, g)$$

$$Re_i = \frac{\rho_l u_l d_p}{\mu_l (1 - \epsilon)}$$

Holub (1990) a introduit deux facteurs f_v et f_s caractérisant l'interface gaz-liquide. Ils représentent respectivement le rapport des vitesses et le rapport des contraintes de frottement à l'interface gaz-liquide.

$$u_{i,g} = f_v u_{i,l} \quad (2.31)$$

$$\tau_{i,g} = f_s \tau_{i,l} \quad (2.32)$$

où $u_{i,g}$ et $u_{i,l}$ sont les vitesses à l'interface gaz-liquide respectivement du gaz et du liquide et de même, $\tau_{i,g}$ et $\tau_{i,l}$ sont les contraintes de frottement à l'interface.

Holub (1990) a montré que les valeurs optimales de ces paramètres sont très proches de zéro. En revanche, Al-Dahhan et al. (1998) ont montré que pour des pressions élevées et des débits de gaz importants, la valeur nulle des deux paramètres n'est plus valable. Ils utilisent alors des valeurs de f_v et f_s , qui dépendent faiblement des débits du gaz et du liquide :

$$f_v = -2.3 Re_g^{0.05} Re_l^{-0.05} \quad (2.33)$$

$$f_s = -4.410^{-2} Re_g^{0.15} Re_l^{0.15} \quad (2.34)$$

avec :

$$Re_\alpha = \frac{\rho_\alpha U_\alpha d_p}{\mu_\alpha} \quad (\alpha = l, g) \quad (2.35)$$

Discrete Cell Model (DCM)

La DCM est un concept proposé pour la première fois par Holub (1990). Dans ce modèle, le réacteur est partagé en N cellules discrètes, avec une porosité qui peut varier d'une cellule à une autre. Le modèle considère que l'écoulement est régi par la minimisation de l'énergie totale de dissipation (i.e. l'écoulement suit les chemins où la résistance à l'écoulement est minimum). Ce concept découle du principe de la minimisation d'entropie (Jaynes, 1980). La figure 2.2 représente une cellule du réacteur en utilisant la DCM.

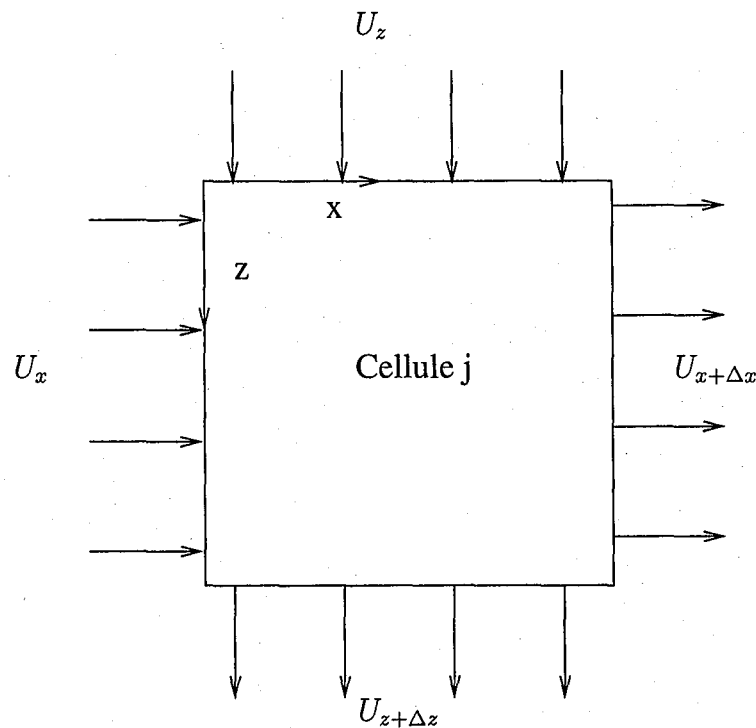


FIG. 2.2 – Schéma d'une cellule dans un RCFLA en utilisant la DCM

Les vitesses superficielles des deux phases à l'interface de chaque cellule (U_z , $U_{z+\Delta z}$ et U_x , $U_{x+\Delta x}$) sont déterminées en minimisant l'énergie de dissipation totale $E_{U,lit}$ dans tout le domaine du réacteur.

Hypothèses simplificatrices

- (i) la porosité de chaque cellule de calcul ϵ_j dans le lit est uniforme (peut varier d'une cellule à l'autre) ;
- (ii) fluides incompressibles ;
- (iii) pas de changement de phase à l'interface (la contribution d'une éventuelle réaction chimique n'est pas prise en compte).

Le bilan "macroscopique" de l'énergie totale, E_U , de la phase α dans la cellule j est exprimé par :

$$\begin{aligned}
 & \sum_{i=1}^4 \left[\frac{1}{2} \left(\rho \left(\frac{U}{\epsilon} \right) \right)^2 \cdot \left(\frac{U}{\epsilon} \right) S_i + p \left(\frac{U}{\epsilon} \right) S_i + \Phi \left(\rho \left(\frac{U}{\epsilon} \right) \right) S_i \right]_{j, \text{entrée}} \quad (2.36) \\
 & - \sum_{i=1}^4 \left[\frac{1}{2} \left(\rho \left(\frac{U}{\epsilon} \right) \right)^2 \cdot \left(\frac{U}{\epsilon} \right) S_i + p \left(\frac{U}{\epsilon} \right) S_i + \Phi \left(\rho \left(\frac{U}{\epsilon} \right) \right) S_i \right]_{j, \text{sortie}} - \left(\frac{E_U}{\epsilon} \right)_{j, \alpha} = 0
 \end{aligned}$$

où U est la vitesse superficielle du fluide de la cellule, S_i est la surface de la face i de la cellule ($i=1,4$), et Φ le potentiel gravitationnel. Les détails sur la signification des termes de l'équation 2.37 sont développés dans Holub (1990).

La DCM, que ce soit pour le milieu diphasique ou monophasique, revient à déterminer les vitesses dans chaque interface des cellules pour chaque phase et ce, en minimisant l'énergie de dissipation totale sur le lit avec comme contrainte la conservation de flux de matière dans la cellule (Eq. 2.38). C'est un problème de minimisation sous contraintes.

$$\text{Minimiser : } E_{U,\text{lit}} = \sum_{\alpha=1}^{n_\alpha} \sum_{j=1}^N E_{U,j,\alpha} \quad (2.37)$$

avec comme contrainte

$$(\rho U_x S_x - U_{x+\Delta x} S_{x+\Delta x})_{j,\alpha} + (\rho U_z S_z - U_{z+\Delta z} S_{z+\Delta z})_{j,\alpha} = 0 \quad (2.38)$$

où n_α est le nombre de phase fluide ($n_\alpha=1$ pour un écoulement monophasique et 2 dans le cas d'un écoulement diphasique)

Application à un écoulement monophasique

Pour un écoulement monophasique gazeux, la contribution des termes de potentiel gravitationnel est négligeable car la masse volumique est très faible. L'énergie dissipée par la phase gazeuse dans la $j^{\text{ème}}$ cellule $E_{U,j,\alpha}$ discrétisée suivant le schéma de la figure 2.2 (rectangulaire à 2D) est donnée par l'équation 2.40 (les détails de la discrétisation sont présentés dans Jiang et al. (2000 b)).

$$\begin{aligned} E_{U,j,\alpha} = & \frac{1}{2} \left[\frac{\rho}{\epsilon_j^2} (U_x^3 S_x - U_{x+\Delta x}^3 S_{x+\Delta x})_j + \frac{\rho}{\epsilon_j^2} (U_z^3 S_z - U_{z+\Delta z}^3 S_{z+\Delta z})_j \right. \\ & + (f_{1,j} U_{x,j}^2 + f_{2,j} U_{x,j}^2 |U_{x,j}| + f_{1,j} U_{x+\Delta x,j}^2 + f_{2,j} U_{x+\Delta x,j}^2 |U_{x+\Delta x,j}|) V_j \\ & \left. + (f_{1,j} U_{z,j}^2 + f_{2,j} U_{z,j}^2 |U_{z,j}| + f_{1,j} U_{z+\Delta z,j}^2 + f_{2,j} U_{z+\Delta z,j}^2 |U_{z+\Delta z,j}|) V_j \right] \end{aligned} \quad (2.39)$$

où V_j est le volume de la cellule j ($\Delta x \cdot \Delta z$) et $f_{1,j}$ et $f_{2,j}$ sont appelés coefficients d'Ergun :

$$\begin{aligned} f_{1,j} &= 150 \frac{(1 - \epsilon_j)^2 \mu}{\epsilon_j^3 d_e^2} \\ f_{2,j} &= 1.75 \frac{\rho(1 - \epsilon_j)}{\epsilon_j^3 d_e} \end{aligned}$$

L'équation 2.40 fait apparaître trois termes qui contribuent à la dissipation d'énergie dans la cellule j : le terme de pertes inertielles $T_{i,j}$, de pertes visqueuses $T_{v,j}$ et de pertes d'énergie cinétique $T_{c,j}$.

$$\begin{aligned} T_{i,j} &= \frac{\rho}{\epsilon_j^2} (U_x^3 S_x - U_{x+\Delta x}^3 S_{x+\Delta x})_j + \frac{\rho}{\epsilon_j^2} (U_z^3 S_z - U_{z+\Delta z}^3 S_{z+\Delta z})_j \quad (2.40) \\ T_{v,j} &= (f_{1,j} U_{x,j}^2 + f_{1,j} U_{x+\Delta x,j}^2 + f_{1,j} U_{z,j}^2 + f_{1,j} U_{z+\Delta z,j}^2) V_j \\ T_{c,j} &= (f_{2,j} U_{x,j}^2 |U_{x,j}| + f_{2,j} U_{x+\Delta x,j}^2 |U_{x+\Delta x,j}| + f_{2,j} U_{z,j}^2 |U_{z,j}| + f_{2,j} U_{z+\Delta z,j}^2 |U_{z+\Delta z,j}|) V_j \end{aligned}$$

Une fois l'expression de l'énergie totale de dissipation déterminée, il faut résoudre le problème de minimisation sous contraintes avec comme variable les vitesses des différentes cellules. La routine DN0ONF de l'International Mathematical Statistics Library (IMSL) a été utilisé par Jiang et al. (2000 b) pour résoudre le problème d'optimisation et ainsi obtenir les composantes de vitesse U_x et U_z pour chaque cellule dans le lit.

Application aux écoulements diphasiques

Dans le cas d'un écoulement gaz-liquide en milieu poreux, l'énergie dissipée de la phase α dans la $j^{\text{ème}}$ cellule $E_{U,j,\alpha}$ discrétisée suivant le schéma de la figure 2.2 (rectangulaire à 2 dimensions) est donnée par l'équation 2.42 (Jiang et al., 1999).

$$\begin{aligned}
 E_{U,j,\alpha} = \frac{\rho_\alpha}{2} & \left[\frac{1}{\epsilon_{j,\alpha}^2} (U_x^3 S_x - U_{x+\Delta x}^3 S_{x+\Delta x})_{j,\alpha} \right. \\
 & + \frac{\rho_\alpha}{\epsilon_{j,\alpha}^2} (U_z^3 S_z - U_{z+\Delta z}^3 S_{z+\Delta z})_{j,\alpha} \\
 & + \left(\frac{1}{\epsilon_{j,\alpha}} \right)^3 [(a_{j,\alpha} + b_j |U_{x,j,\alpha}|) U_{x,j,\alpha}^2 \\
 & + (a_{j,\alpha} + b_j |U_{x+\Delta x,j,\alpha}|) U_{x+\Delta x,j,\alpha}^2] V_j \\
 & + \left(\frac{1}{\epsilon_{j,\alpha}} \right)^3 [(a_{j,\alpha} + b_j |U_{z,j,\alpha}|) U_{z,j,\alpha}^2 \\
 & + (a_{j,\alpha} + b_j |U_{z+\Delta z,j,\alpha}|) U_{z+\Delta z,j,\alpha}^2] V_j \\
 & - [g_x (U_x + U_{x+\Delta x})_{j,\alpha} \cos^2(\gamma_x) \\
 & \left. + g_z^2 (U_z + U_{z+\Delta z})_{j,\alpha} \cos^2(\gamma_z)] V_j \right]
 \end{aligned} \tag{2.41}$$

où Φ est le potentiel gravitationnel, a_j et b_j des variables liées à la porosité de la cellule et $\gamma_{x,z}$ l'angle que forme les axes par rapport au plan horizontal.

$$\begin{aligned}
 a_j &= A \frac{(1 - \epsilon_j)^2 \mu_\alpha}{\rho_\alpha \epsilon_j^3 d_p^2} \\
 b_j &= B \frac{(1 - \epsilon_j)}{\epsilon_j^3 d_p}
 \end{aligned}$$

Jiang et al. (1999) ont fixé la porosité à 0,44 à la paroi, alors qu'elle varie suivant une loi normale entre 0,36 et 0,44 dans le reste du lit de telle sorte que la porosité moyenne soit égale à celle mesurée expérimentalement dans le lit ($\epsilon = 0,41$).

De la même manière que dans le cas monophasique, Jiang et al. (1999) ont utilisé la subroutine DN0ONF de IMSL pour résoudre le problème de minimisation sous contraintes de l'énergie totale de dissipation et ainsi obtenir les composantes de vitesse U_x et U_z pour chaque cellule dans le lit.

Une nouvelle approche différente par le principe et la forme des autres modèles a été mise en œuvre par Kashiwa et Rauenzahn (1994) pour décrire les écoulements polyphasiques. Le principe et les détails de cette formulation sont explicités dans le paragraphe suivant.

2.3 Formulation statistique moyennée

Une approche complètement différente des formulations "classiques" a été proposée par Kashiwa et Rauenzahn (1994) pour décrire les écoulements polyphasiques. Ils ont défini une forme moyennée des équations de conservation de la masse, de quantité de mouvement et d'énergie en utilisant une procédure analogue à la méthode statistique utilisée pour les écoulements à l'état de non-équilibre fondée sur l'équation de Boltzman.

En se basant sur cette formulation, le Los Alamos National Laboratory a développé un code de calcul (CFDLlib) dans le but de simuler les écoulements polyphasiques (Kashiwa et al., 1994);

2.3.1 Principes et définitions

Soit une fonction de distribution statistique $f(t, x, \Gamma_0)$ qui est définie telle que $f d\Gamma_0$, est la probabilité que le centre de gravité à l'instant t et à la position x , dans le volume V , soit dans un intervalle $d\Gamma_0$ autour de l'état donné par le vecteur Γ_0 .

On a alors $\int f d\Gamma_0 = 1$ (normalisation).

L'état d'une matière pure dans un volume V est complètement décrite par la masse m_0 , la vitesse u_0 , et l'énergie interne e_0 . Ainsi le vecteur d'état Γ_0 s'écrit :

$$\Gamma_0 = (m_0, u_0, e_0) \quad (2.42a)$$

$$\text{et } d\Gamma_0 = dm_0 du_0 de_0 \quad (2.42b)$$

La fonction de distribution f doit satisfaire l'équation de variation totale dans toute les phases de l'espace (t, x, Γ_0) .

$$\dot{t} \frac{\partial f}{\partial t} + \dot{x} \cdot \nabla f + \dot{\Gamma}_0 \cdot \frac{\partial f}{\partial \Gamma_0} = \frac{Df}{Dt} \quad (2.43)$$

en sachant que $\dot{x} = u_0$ et $\dot{t} = 1$ l'équation 2.43 devient :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + u_0 \cdot \nabla f + \dot{\Gamma}_0 \cdot \frac{\partial f}{\partial \Gamma_0} = \frac{Df}{Dt} \quad (2.44)$$

Le moment d'ordre 1 de f exprimant la moyenne de l'entité Q_0 , $\langle Q_0 \rangle$, est défini comme suit :

$$\int Q_0 f d\Gamma_0 = \langle Q_0 \rangle \quad (2.45)$$

Ainsi l'équation de variation totale (Eq. 2.44), moyennée, s'écrit :

$$\frac{\partial \langle Q_0 \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot \langle Q_0 u_0 \rangle = \langle \dot{\Gamma}_0 \cdot \frac{\partial Q_0}{\partial \Gamma_0} \rangle + \int Q_0 \frac{Df}{Dt} d\Gamma_0 \quad (2.46)$$

Q_0 peut être assimilé à une masse m_0 , à une quantité de mouvement $m_0 u_0$ ou à une énergie totale de la matière $m_0(e_0 + \frac{1}{2}u_0^2) = m_0 E_0$.

En utilisant la décomposition de Reynolds de la vitesse en termes de vitesse moyenne et de vitesse de fluctuation, $u_0 = u + u'_0$ et en remplaçant Q_0 par ces différents termes, on obtient :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \rho u = 0 \quad (2.47)$$

$$\frac{\partial \rho u}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u u + \langle \rho_0 u'_0 u'_0 \rangle) = \langle m_0 \dot{u}_0 \rangle / V \quad (2.48)$$

$$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \nabla \cdot \rho E u + \langle \rho_0 E_0 u'_0 \rangle = \langle m(\dot{e}_0 + u_0 \cdot \dot{u}_0) \rangle / V \quad (2.49)$$

Avec $\rho = \langle m_0 \rangle / V$, $\rho u = \langle m_0 u_0 \rangle / V$ et $\rho E = \langle m_0 E_0 \rangle / V$.

Dans le cas de plusieurs espèces dans le système, d'autres variables s'ajoutent au vecteur d'état Γ , à savoir la fraction de chaque espèce α_k . Dans ce cas la probabilité pour que l'état (t, x) soit dans intervalle $d\Gamma_N$ ($d\Gamma_N = dm_0 du_0 de_0 d\alpha_1 d\alpha_2 \dots d\alpha_N$) est fournie par :

$$f(t, x, m_0, u_0, e_0, \alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_N) dm_0 du_0 de_0 d\alpha_1 d\alpha_2 \dots d\alpha_N,$$

et le moment d'ordre 1 (moyenne) de l'espèce k s'écrira alors :

$$\int \alpha_k Q_0 f d\Gamma_N = \langle \alpha_k Q_0 \rangle.$$

Dans ce cas, les équations de masse et de quantité de mouvement s'écrivent :

$$\frac{\partial \rho_k}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_k u_k = \langle \rho_0 \dot{\alpha}_k \rangle \quad (2.50)$$

$$\frac{\partial \rho_k u_k}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_k u_k u_k + \langle \alpha_k \rho_0 u'_k u'_k \rangle) = \langle \alpha_k m_0 \dot{u}_0 \rangle / V + \langle \rho_0 u_0 \dot{\alpha}_k \rangle \quad (2.51)$$

où $\rho_k = \langle \alpha_k m_0 \rangle / V$, $\rho_k u_k = \langle \alpha_k m_0 u_0 \rangle / V$.

Les termes impliquant $\dot{\alpha}_k$ représentent la source de masse ($\langle \rho_0 \dot{\alpha}_k \rangle$) ou de quantité de mouvement ($\langle \alpha_k m_0 \dot{u}_0 \rangle$) créée lors des conversions des espèces.

L'équation générale de Navier-Stokes appliquée au cas d'une espèce pure s'écrit sous la forme suivante :

$$m_0 \dot{u}_0 = -V \nabla p_0 + V \nabla \cdot \tau_0 + \rho_0 V g \quad (2.52)$$

De la même manière, en appliquant l'équation de Navier-Stokes à l'espèce k , on aura :

$$\langle \alpha_k m_0 \dot{u}_0 \rangle / V = -\langle \alpha_k \nabla p_0 \rangle + \langle \alpha_k \nabla \tau_0 \rangle + \langle \alpha_k \rho_0 g \rangle \quad (2.53)$$

Le terme de gravitation peut s'écrire comme suit :

$$\langle \alpha_k \rho_0 g \rangle = \rho_k g \quad (2.54)$$

Les contraintes visqueuses, $\langle \alpha_k \nabla \tau_0 \rangle$, sont décomposées en deux termes :

$$\langle \alpha_k \nabla \tau_0 \rangle = \nabla \cdot \langle \alpha_k \tau_0 \rangle - \langle \tau_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle \quad (2.55)$$

Le premier terme ($\nabla \cdot \langle \alpha_k \tau_0 \rangle$) représente le tenseur moyen de l'espèce k et le deuxième terme ($\langle \tau_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle$) représente la fluctuation du tenseur caractérisant le mélange : ce terme s'annule quand le mélange est parfait.

Une attention toute particulière est portée au terme de pression qui est une des spécificités de cette formulation.

$$-\langle \alpha_k \nabla p_0 \rangle = -\nabla \langle \alpha_k p_0 \rangle + \langle p_0 \nabla \alpha_k \rangle \quad (2.56)$$

Après quelques modifications on obtient (Kashiwa et Rauenzahn, 1994) :

$$-\langle \alpha_k \nabla p_0 \rangle = -\nabla p_k + p \nabla \theta_k + \langle (p_0 - p) \nabla \alpha_k \rangle \quad (2.57)$$

$$= -\nabla (p_k - \theta_k p) - \theta_k \nabla p + \langle (p_0 - p) \nabla \alpha_k \rangle \quad (2.58)$$

L'équation 2.56, décompose le terme de pression en deux parties : la première ($-\nabla \langle \alpha_k p_0 \rangle$) correspond aux champs de pression de l'espèce k et la deuxième ($\langle p_0 \nabla \alpha_k \rangle$) est relative au mélange.

Avec θ_k la fraction volumique moyenne de l'espèce k , $\langle \alpha_k \rangle = \theta_k$, et p_k est la pression de l'espèce k .

$$\langle \alpha_k p_0 \rangle = p_k \quad (2.59)$$

De plus p est définie comme étant la moyenne de p_0 ($p = \langle p_0 \rangle$). Dans le cas général, le choix de la pression moyenne p est arbitraire, seulement pour des raisons physiques, "la pression d'équilibre" a été choisie. Elle est définie par :

$$1 - \sum_k \rho_k v_k(p, T_k) = 0 \quad (2.60)$$

où v_k est le volume massique de l'espèce ou phase k à la pression d'équilibre p et à la température moyenne de l'espèce ou phase k , T_k .

Notons que le terme $\rho_k v_k$ représente la fraction volumique de l'espèce ou phase k par rapport au volume total. De ce fait, on définit "la fraction volumique d'équilibre" θ_k^e .

$$\theta_k^e = \rho_k v_k(p, T_k), \quad (2.61)$$

La pression de l'espèce k sera de la forme $p_k = \theta_k p_k^0(v_k, T_k)$ où $p_k^0(v_k, T_k)$ est la pression de l'espèce ou phase k pur. Ainsi, le terme d'échange de quantité de mouvement dû au non équilibre de la pression, $(p_k - \theta_k p)$ s'écrit alors $\theta_k (p_k^0 - p)$.

Lorsque la pression est en équilibre, la fraction volumique de k est égale à la fraction volumique d'équilibre :

$$\theta_k = \theta_k^e = \rho_k v_k(p, T_k). \quad (2.62)$$

Par contre, si le système n'est pas en équilibre, θ_k est déterminée à l'aide de l'équation de conservation globale appliquée à la fraction volumique moyenne ($Q_0 = \alpha_k$).

$$\frac{\partial \theta_k}{\partial t} + \nabla \theta_k u_k + \nabla \langle \alpha_k u_k' \rangle = \langle \dot{\alpha}_k \rangle \quad (2.63)$$

En général, la fraction volumique moyenne de l'espèce ou phase k peut être déduite des équations d'état pour cette même espèce ou phase.

$$\theta_k = \rho_k v_k(p_k^0, T_k). \quad (2.64)$$

En conclusion, les équations de conservation (masse et quantité de mouvement) résultantes et la signification de chaque terme sont récapitulées ci-dessous :

Équations de masse

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_k}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_k u_k & \text{ changement de la masse de la phase } k \text{ en un point} \\ & \text{(terme de variation par rapport au temps + terme convectif)} \\ = \langle \rho_k \dot{\alpha}_k \rangle & \text{ source de masse due à la conversion entre phases} \end{aligned}$$

Équation de mouvement

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho_k u_k + \nabla \cdot \rho_k u_k u_k & \text{ variation de la quantité de mouvement en un point} \\ = \langle \rho_0 u_0 \dot{\alpha}_k \rangle & \text{ source de quantité de mouvement due à la conversion} \\ & \text{ d'une phase à l'autre} \\ -\nabla \cdot \langle \alpha_k \rho_0 u'_k u'_k \rangle & \text{ tenseur de Reynolds dû à la fluctuation des} \\ & \text{ vitesses par rapport à leur valeur moyenne} \\ -\theta \nabla p & \text{ force de pression (en équilibre)} \\ + \rho_k g & \text{ force de pesanteur} \\ -\nabla \theta_k (p_k^0 - p) & \text{ force due à la fluctuation de la pression par rapport} \\ & \text{ à l'équilibre} \\ + \nabla \cdot \langle \alpha_k \tau_0 \rangle & \text{ tenseur moyen de la phase } k \text{ (contrainte visqueuse)} \\ + \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle & \text{ quantité de mouvement échangée par l'action de} \\ & \text{ la fluctuation de pression par rapport à l'équilibre} \\ & \text{ et la déviation de contrainte.} \end{aligned}$$

Les équations ci-dessus sont exactes et leur résolution nécessite la description des termes inconnus par des modèles mathématiques. Ce qui est communément appelé fermeture. Il convient de souligner que l'un des avantages principaux de cette méthode est qu'elle fait apparaître clairement les différents termes à modéliser afin de fermer le système d'équations.

Les fermetures utilisées dépendent du problème étudié et des hypothèses faites. Elles seront décrites par la suite.

2.3.2 Résolution du système

En se basant sur la formulation de Kashiwa et Rauenzahn (1994), le Los Alamos National Laboratory (LANL) a développé un code de calcul (CFDLib) pour simuler les écoulements polyphasiques en utilisant la méthode ICE (Implicit Continuous-fluid Eulerian) dont le principe est décrit ci-dessous.

Principe de la méthode ICE classique

La méthode ICE classique (Harlow et Amsden, 1968, 1971) est un schéma de différences finies utilisé pour la résolution des équations de transfert dans le cas d'écoulement monophasique. Cette méthode est basée essentiellement sur la variation de la pression en fonction de la masse volumique. L'avantage principal de cette méthode est qu'elle peut être appliquée à n'importe quelle vitesse de fluide, des plus faibles où le fluide est incompressible, aux vitesses supersoniques où la compressibilité du fluide n'est pas négligeable. En outre, ICE est une méthode souple car il est possible de choisir l'équation d'état reliant les différentes variables thermodynamiques, notamment la pression et la masse volumique. Par exemple, pour un fluide parfait dans un milieu isentropique ($S = S_0$), on aura :

$$\left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_{S=S_0} = c^2 \quad (2.65)$$

où c est la vitesse du son dans le milieu considéré.

Cette relation est utilisée pour décrire la compressibilité du fluide. Les fluides ayant $c \rightarrow \infty$ correspondent à des fluides incompressibles.

La discrétisation est effectuée suivant un schéma eulérien classique avec des cellules de forme rectangulaire de même dimension. La figure 2.3 montre la disposition des différentes variables dans une cellule ICE classique. La densité, la pression et l'énergie sont définies au centre de la cellule. Par contre, les composantes de vitesses sont prises au milieu des faces de la cellule. Cette méthode peut être utilisée pour décrire l'écoulement de fluides compressibles notamment les ondes de choc, sauf qu'il faut faire un choix judicieux de l'équation d'état.

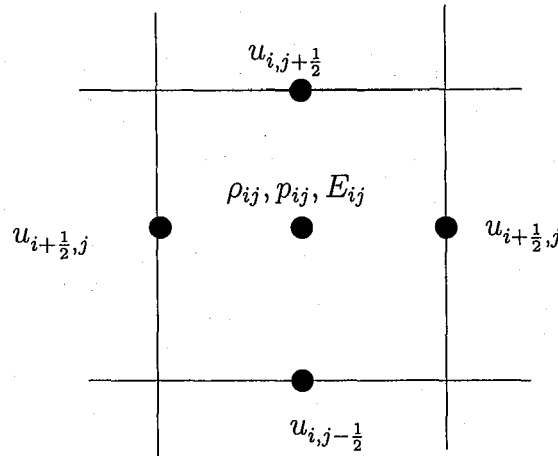


FIG. 2.3 – Définition des différentes variables pour une cellule ICE

2.3.3 Description de l'algorithme de résolution

Pour pouvoir résoudre les équations moyennées de Kashiwa et Rauenzahn (1994), le schéma de volumes finis, ICE, a été généralisé aux écoulements polyphasique en utilisant le formalisme ALE (*Arbitrary-Eulerian-Lagrangian*). Arbitraire car le maillage est adaptatif, *Eulerian-Lagrangian* car on utilise les deux schémas classiques de discrétisation. Le schéma lagrangien où le maillage est mobile et le schéma eulérien où le maillage est fixé dans l'espace.

Contrairement au schéma eulérien où la solution numérique dépend du maillage considéré (Vial, 2000), la combinaison des schémas eulérien et lagrangien permet de dissocier le mouvement du maillage et de la matière, ce qui est d'un intérêt majeur pour la description physique des processus.

Relation de base entre les valeurs lagrangienne et eulérienne

Pour commencer la simulation, il faut avoir une base sur laquelle s'appuient toutes les étapes de calcul, à savoir une relation de passage des valeurs lagrangiennes aux valeurs eulériennes des différentes grandeurs physiques.

Soit $q_k(x, t)$ une variable de calcul qui peut représenter une masse volumique ρ ou une vitesse u , associée au volume $V(t, x)$ et à la phase k . En utilisant la règle de Liebnitz, on a :

$$\int_V \frac{\partial q_k}{\partial t} dV + \int_k n \cdot q_k u_k dS = \frac{d}{dt} \int_V q_k dV \quad (2.66)$$

En supposant que q_k est la valeur moyenne dans V , on aura ainsi :

$$\frac{d}{dt} \int_V q_k dV = \frac{\Delta(q_k V)}{\Delta t} \quad (2.67)$$

L'équation 2.66 exprime la variation due au processus physique. Dans le cas où le repère est mobile, des variations dues au transport de la matière sont mises en jeu et sont décrites par :

$$\int_V \frac{\partial q_k}{\partial t} dV + \int_k n_k q_k u_m dS = \frac{d_m}{dt} \int_V q_k dV \quad (2.68)$$

Le changement total de la quantité q_k dans le volume V peut être exprimé par la différence entre l'équation 2.66 et 2.68 en utilisant 2.67 :

$$\frac{d_m}{dt} q_k V + \int_V n q_k (u_k - u_m) dS = \frac{\Delta(q_k V)}{\Delta t} \quad (2.69)$$

Une forme discrétisée de cette équation s'écrit :

$$q_k^{n+1} V^{n+1} - q_k^n V^n + \Delta t A(q_k) = q_k^L V^L - q_k^n V^n \quad (2.70)$$

soit

$$q_k^{n+1} = [q_k^L V^L - \Delta t A(q_k)] / V^{n+1} \quad (2.71)$$

où l'exposant L dénote les valeur "lagrangienne" (repère mobile), n le pas de temps et $\Delta t A(q_k)$ est appelé opérateur advectif :

$$\Delta t A(q_k) = \sum_i \Delta t S_i \cdot (u_k^* - u_m)_i \ll q_k \gg_i^u \quad (2.72)$$

avec $(u_k^*)_i$ la vitesse de flux qui est la vitesse à laquelle la phase k traverse la face i de l'élément de volume du maillage mobile. C'est le produit principal de l'une des étapes de calcul (phase primaire).

u_m est la vitesse du maillage mobile fixée par le simulateur et $\ll q_k \gg_i^u$ la moyenne pondérée par la vitesse de q_k .

Étapes de calcul

Le calcul peut être résumé en trois phases principales :

- La phase primaire dans laquelle les quantités auxiliaires sont calculées (fraction volumique moyenne, vitesses de flux, pression de face centrée...)
- La phase lagrangienne dans laquelle les effets physiques du processus sont calculés (valeur des variables par rapport au maillage mobile)
- La phase eulérienne où les différentes variables sont corrigées par rapport au maillage fixe.

Dans la notation des différentes grandeurs, les exposants c et f représentent respectivement les quantités au centre et au milieu de la face de la cellule de calcul (Fig. 2.4), l'exposant L désigne une grandeur lagrangienne et les indices g et d désignent respectivement les grandeurs de la face gauche et droite par rapport au centre de la cellule.

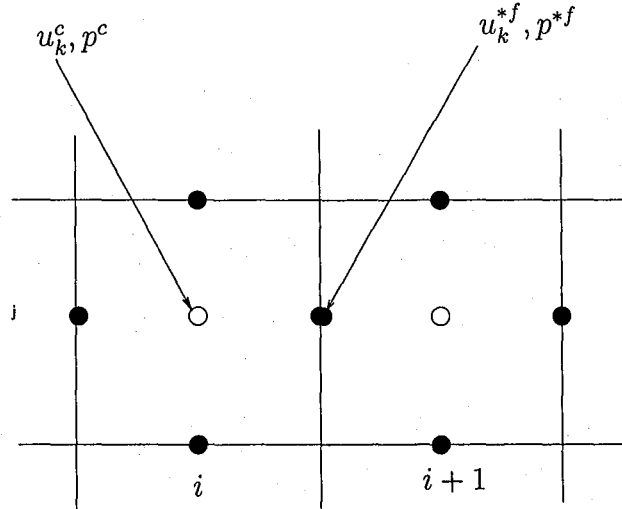


FIG. 2.4 – Localisation des différentes variables dans une cellule de calcul dans CFDLib

Phase primaire

Dans cette phase, on va déterminer des variables intermédiaires qui vont servir dans la suite du calcul :

1. Déterminer la valeur de la fraction volumique moyenne θ_k .

Dans le cas où l'une des phases n'est pas à la pression d'équilibre, il faut résoudre l'équation de conservation globale appliquée à la fraction volumique moyenne (équation 2.63).

Par contre, si la pression est en équilibre ($p_0 = p$), on a $\theta_k = \rho_k v_k(p, T_k)$.

2. Calculer la valeur de la vitesse de flux u_k^* .

Dans le cas monophasique, la vitesse de flux u^* est la solution de l'équation lagrangienne (Eq. 2.73) exprimée au centre de la face de la cellule (Kashiwa et al., 1994; Harman, 2000)), comme suit :

$$(m\dot{u}) = V\nabla p + mg \quad (2.73)$$

En discrétisant cette équation sur les deux faces, gauche et droite, du centre de la cellule au temps $t^n + \Delta t/2$ on a :

$$u^* = \left(\frac{\rho_g u_g + \rho_d u_d}{\rho_g + \rho_d} \right) - v^f \Delta t \nabla^f p + g \Delta t / 2 \quad (2.74)$$

ou bien

$$u^* = \ll u^n \gg^\rho - v^f \Delta t \nabla^f p + g \Delta t / 2 \quad (2.75)$$

Où $\ll u^n \gg^\rho$ est la vitesse moyenne pondérée par la masse volumique.

Dans le cas polyphasique, la vitesse de flux est définie comme étant la solution de

l'équation suivante au temps $t^n + \Delta t/2$.

$$(m_k u_k) = -\theta_k V \nabla p + \theta_k \theta_l V (u_l - u_k) + m_k g \quad (2.76)$$

Sous forme discrétisée, cette équation s'écrit :

$$u_k^* = \ll u_k^n \gg_k^\rho - \ll v_k \gg_k^\rho \Delta t \nabla^f p^L + \ll v_k \theta_l \gg_k^\rho (u_l - u_k) + g \Delta t / 2 \quad (2.77)$$

3. L'autre valeur auxiliaire qui va servir à déterminer les termes sources, est la pression de la face centrée de la cellule p^{*f} . Elle est déterminée en utilisant la vitesse de flux et l'équation d'état pour la pression. Dans le cas monophasique, l'équation de pression se réduit à l'équation suivante

$$\dot{p} = -(c^2/v) \nabla \cdot u \quad (2.78)$$

4. Déterminer le volume lagrangien. Il est fourni par :

$$V_k^L = V^n + \Delta t \sum_i (S \cdot u_k^*)_i \quad (2.79)$$

5. Calculer les différents termes sources de masse $\Delta(m_k)$ et de quantité de mouvement $\Delta(m_k u_k)$.

Pour la masse, le seul terme source est celui dû à la conversion entre les phases, alors que pour la quantité de mouvement, les termes sources sont dus à la conversion de la masse, force de gravité, fluctuation de la pression par rapport à l'équilibre et le terme d'échange de quantité de mouvement.

$$\Delta m_k^2 = \Delta t \langle m_k \dot{\alpha}_k \rangle \quad (2.80)$$

$$\begin{aligned} (\Delta m_k u_k) / m_k^L &= \frac{\Delta t \langle m_k u_k \dot{\alpha}_k \rangle}{m_k^L} + g \Delta t \\ &\quad - \frac{(v_k \Delta t V^n \nabla^c p^{*f})}{V_k^L} \\ &\quad + \frac{v_k \theta_l \Delta t V^n X (u_l - u_k)}{V_k^L} \\ &\quad + \frac{(\Delta t V^n \nabla^c \cdot \vec{T}_k)}{V_k^L} \end{aligned}$$

Phase lagrangienne

Dans cette phase, on va évaluer les valeurs lagrangiennes d'après les équations ci-dessous :

$$\rho_k^L = \frac{[\rho V^n + \Delta m_k]}{V_k^L} \quad (2.81)$$

$$u_k^L = u_k^n \left[1 - \frac{(\Delta m_k)}{m_k^L} \right] + \frac{(\Delta m_k u_k)}{m_k^L} \quad (2.82)$$

Phase eulérienne

Les différentes étapes de cette phase sont :

1- Déterminer l'élément de volume à l'instant suivant V_k^{n+1} .

$$V^{n+1} = V^n + \Delta t \sum_i (S \cdot u_m)_i \quad (2.83)$$

2- Déterminer les valeurs de masse volumique et de vitesse à l'instant suivant (ρ_k^{n+1} et u_k^{n+1}).

$$\rho_k^{n+1} = \frac{[\rho_k^L V_k^L + \Delta t A(\rho_k^n)]}{V^{n+1}} \quad (2.84)$$

$$u_k^{n+1} = \frac{[u_k^L V_k^L + \Delta t A(u_k^n)]}{V^{n+1}} \quad (2.85)$$

En se basant sur cette formulation, le Los Alamos National Laboratory a développé un code de calcul dans le but de simuler les écoulements polyphasiques appelé CFDLib. Cette technique offre beaucoup d'avantages pour la simulation des écoulements polyphasique et notamment dans le cas des RCLFA. En plus de sa flexibilité (on peut introduire les modèles de turbulence, d'interaction entre les phases, de distribution de porosité...), cette approche permet de tenir compte, par le moyen de la ICE, de la compressibilité des différentes phases présentes.

Dans ce qui suit, des exemples d'application de cette formulation dans le cas de réacteurs à lit fixe monophasique et diphasique seront traités.

2.3.4 Exemples d'application en milieu poreux

Peu d'études de simulation utilisant la formulation statistique moyennée de Kashiwa et Rauenzahn (1994) ont été menées. Les quelques études en milieu poreux monophasique et diphasique sont dénombrées ci-dessous.

Application à un lit fixe monophasique

À l'aide de cette approche, Jiang et al. (2000 b) ont simulé des écoulements non réactifs dans un lit fixe monophasique ($D = 7,2$ cm et $d_p = 3$ mm). Le profil de porosité a été varié de façon gaussienne entre 0,36 et 0,44 (en paroi la porosité est fixée à 0,44) de manière à avoir une porosité moyenne du lit égale à 0,415.

Les résultats obtenus par Jiang et al. (2000 b) sont comparés à ceux obtenus par DCM dans les mêmes conditions et un bon accord est remarqué (la différence entre les deux méthode ne dépasse pas 10%).

De plus, la comparaison entre les mesures optiques de vitesse effectuées par Stephenson et Stewart (1986) aux valeurs obtenues par le code CFDLib de Jiang et al. (2000 b) a donné des résultats satisfaisants.

Les mesures ont été faites dans un lit de diamètre $D = 7,52$ cm avec des particules solides cylindriques de diamètre équivalent $d_e = 7$ mm. Les valeurs de porosité sont prises égales aux mesures expérimentales effectuées par Stephenson et Stewart (1986) uniquement dans le sens radial de la colonne.

Application au cas des RCLFA

En utilisant le code CFDLib, une simulation des écoulements dans les RCLFA a été réalisée par Jiang et al. (2000a, 1999) dans les conditions opératoires correspondant au régime ruisselant. Des relations de fermeture adaptées au cas du RCFLA sont utilisées pour résoudre les équations de transport.

La porosité dans le lit a été fixée préalablement selon une distribution Pseudo-Gaussienne (existence de facteur d'asymétrie et facteur d'aplatissement par rapport à la loi normale).

L'étude a été réalisée pour des diamètres de particules $d_p = 3$ mm, une porosité moyenne du lit $\epsilon = 0,399$, une vitesse de gaz à l'entrée $U_g = 0,03$ m/s et à plusieurs débits liquide ($L < 14$ kg.m⁻².s⁻¹).

En comparaison avec les résultats de Holub et al. (1992), obtenus pour un système air-eau, le calcul effectué avec CFDLib sous-estime les valeurs des rétentions liquides (erreur inférieure à 10 %).

2.4 Conclusion

Il est évident que la simulation des écoulements polyphasique en milieu poreux, notamment dans les RCFLA, n'est pas aisée. L'une des difficultés majeures réside dans le fait qu'il n'y a pas d'équations de fermeture appropriées du système. En effet, les phénomènes de transport et de transfert ne sont pas complètement maîtrisés dans la plupart des réacteurs polyphasique. CFDLib associé à des équations de fermeture appropriées qui prennent en compte la distribution de porosité, la nature des interactions entre phases et la turbulence, nous semble un moyen adapté pour la simulation des écoulements dans les RCFLA.

Chapitre 3

Modélisation et simulation des lits fixes monophasique

Dans ce chapitre, la formulation statistique moyennée est utilisée pour la modélisation et la simulation de l'hydrodynamique et du transfert de matière liquide/paroi dans un réacteur à lit fixe et à écoulement monophasique de liquide. Les résultats des simulations seront comparés aux différents résultats expérimentaux et corrélations de la littérature.

3.1 Hydrodynamique

La simulation est réalisée pour le réacteur étudié par Naderifar (1995). Le lit fixe utilisé est une colonne de diamètre intérieur 5 cm, garnie de billes de verre de 5 mm de diamètre. La porosité moyenne du lit est de l'ordre de 0,39. La hauteur du garnissage H est de 1,33 m. Le liquide considéré est une solution aqueuse contenant 0,5 M de soude et le couple électrochimique d'hexacyanoferrate de potassium, $K_3Fe(CN)_6$, $K_4Fe(CN)_6$ de concentration 10^{-3} M et 0,01 M respectivement. Sa masse volumique est 1019 kg/m^3 et sa viscosité dynamique est $0,9 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$.

3.1.1 Formulation du problème

La formulation statistique moyennée a été appliquée pour modéliser l'écoulement vers le bas de liquide dans un lit fixe. Dans le but de simplifier le problème, les hypothèses simplificatrices, mais néanmoins réalistes, suivantes ont été utilisées :

- le terme source de masse est nul du fait qu'il n'y pas de changement de phase et pas de réaction chimique
- la contribution du terme de tenseur de Reynolds turbulent est négligée
- la phase fluide est en équilibre ($p = p_0$)

Dans ces conditions, les équations de continuité et de quantité de mouvement s'écrivent :

Équation de continuité

$$\frac{\partial \rho_l}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_l u_l = 0 \quad (3.1)$$

Équation de mouvement

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_l u_l + \nabla \rho_l u_l u_l = -\theta \nabla p + \rho_l g + \nabla \cdot \langle \alpha_l \tau_0 \rangle + \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_l \rangle \quad (3.2)$$

Conditions initiales et aux limites

Comme dans tout le long de cette étude, les variations azimutales (suivant θ) ne sont pas prises en compte. La configuration géométrique en 2 dimension (r, z) utilisée est présentée sur la figure 3.1.

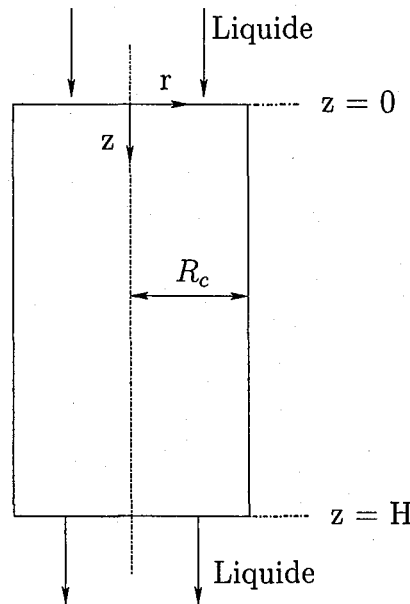


FIG. 3.1 – Schéma simplifié du réacteur en 2D

Ainsi, les conditions initiales et aux limites sont données comme suit :

– Initialement, le lit est supposé noyé par le fluide :

$$t = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad 0 \leq z \leq H, \quad \Rightarrow u_{lr} = u_{lz} = 0; \quad (3.3)$$

– Le long de la paroi du lit, les conditions d'adhérence sont imposées :

$$r = R_c, \quad \forall t, \quad \forall z \quad \Rightarrow u_{lr} = u_{lz} = 0; \quad (3.4)$$

– On considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0, \quad \forall t, \quad \forall z \quad \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial u_l}{\partial r} = 0; \quad (3.5)$$

- À la sortie du réacteur, on considère que tous les gradients axiaux sont nuls :

$$z = H, \forall r \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{\partial u_i}{\partial z} = 0; \quad (3.6)$$

- Enfin, à l'entrée, on impose des vitesses axiales uniformes et des vitesses radiales nulles :

$$z = 0, \forall r \Rightarrow u_{iz} = u_i^e \quad (3.7a)$$

$$\text{et } u_{ir} = 0. \quad (3.7b)$$

3.1.2 Profil de porosité

Dans cette étude, la variation axiale de la porosité est négligée. On ne prend en compte que la variation radiale. En effet, des travaux expérimentaux (Daszkowski et Eigenberger (1992) et Schnitzlein (2001)) ont montré que la variation axiale de la porosité se manifeste seulement à l'entrée du réacteur ($z/d_p < 3$). Par contre la variation radiale est beaucoup plus significative.

Plusieurs modèles pour décrire les variations radiales de la porosité existent dans la littérature. On peut notamment citer :

- Cohen et Metzner (1981) ont proposé un modèle à trois zones :

$$x \leq 0,25 \Rightarrow \frac{1 - \epsilon}{1 - \epsilon_\infty} = 4,5 \left(x - \frac{7}{9} x^2 \right) \quad (3.8a)$$

$$0,25 \leq x \leq 8 \Rightarrow \frac{\epsilon - \epsilon_\infty}{1 - \epsilon_\infty} = a_1 \cdot \exp(-a_2 x) \cos[(a_3 x - a_4)\pi] \quad (3.8b)$$

$$x > 8 \Rightarrow \epsilon = \epsilon_0 \quad (3.8c)$$

où ϵ_∞ est la porosité à la paroi, ϵ_0 la porosité au centre de la colonne ($\epsilon(r = 0)$), $x = \frac{(R_c - r)}{d_p}$, $a_1 = 0,3463$, $a_2 = 0,4273$, $a_3 = 2,4509$ et $a_4 = 2,2011$.

- Un autre modèle a été proposé par Vortmeyer et Schuster (1983) :

$$\epsilon = \epsilon_0 + (1 - \epsilon_0) \exp\left(-2 \frac{(R_c - r)}{d_p}\right) \quad (3.9)$$

où R_c est le rayon de la colonne.

- Plus récemment, Mueller (1992) a proposé de représenter la variation de porosité sous forme d'oscillations amorties :

$$\epsilon = \epsilon_0 + (1 - \epsilon_0) J_0 \left(a \frac{R_c - r}{d_p} \right) \exp\left(-b \frac{R_c - r}{d_p}\right) \quad (3.10)$$

$$\text{avec } b = 0,315 - \frac{0,725}{D_c/d_p} \text{ et}$$

$$a = 7,45 - \frac{3,15}{D_c/d_p} \quad \text{pour } 2,02 \leq D_c/d_p \leq 13,0 \quad (3.11a)$$

$$a = 7,45 - \frac{11,25}{D_c/d_p} \quad \text{pour } 13,0 \leq D_c/d_p \quad (3.11b)$$

Les différents profils cités sont représentés sur la figure 3.2.

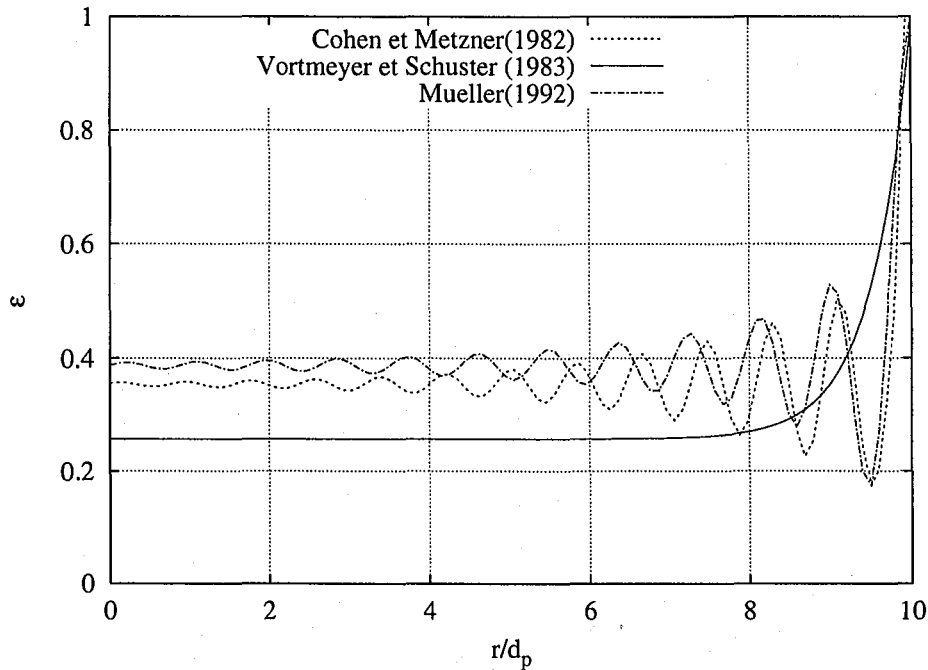


FIG. 3.2 – Profils de porosité

Certains de ces modèles nécessitent l'ajustement de paramètres tels que la porosité dans la zone centrale (supposée constante) et la porosité à la paroi. Ces paramètres sont fixés de façon à avoir une porosité moyenne ϵ égale à la porosité mesurée et une porosité de 1 à la paroi, soit :

$$\epsilon(r = R_c) = 1 \quad (3.12a)$$

$$2 \int_0^{R_c} \epsilon(r) r dr = \epsilon R_c^2 \quad (3.12b)$$

En utilisant ces deux relations les valeurs de ϵ_0 ont été calculées pour les conditions opératoires déjà citées ($\epsilon = 0,39$, $d_p = 5$ mm et $D_c = 10$ cm), et sont présentées dans le tableau 3.1.

TAB. 3.1 – valeurs de ϵ_0 pour différents modèles de porosité

Modèle	ϵ_0
Cohen et Metzner (1981)	0,366
Vortmeyer et Schuster (1983)	0,259
Mueller (1992)	0,354

Tous ces modèles sont valables dans le cas de particules monodisperses sphériques. De ce fait, ils ne peuvent pas être utilisés dans d'autres cas (garnissage de particules non sphériques ou polydisperses).

Dans cette étude, les profils de Vortmeyer et Schuster (1983) et Mueller (1992) ont été utilisés pour décrire la variation de porosité dans le lit.

3.1.3 Equation de fermeture

Le terme d'échange de quantité de mouvement entre la phase fluide et la phase solide ($F_{D(f-s)} = \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle$) peut être modélisé comme étant le produit d'un coefficient d'échange, X_{fs} , et d'une force motrice ($u_f - u_s$), pondérée par les fractions volumiques des deux phases, θ_f et θ_s . Puisque la vitesse du solide est nulle (lit fixe) et que l'écoulement est monophasique, l'expression de $F_{D(f-s)}$ se réduit alors à :

$$F_{D(f-s)} = \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle = \theta_f \theta_s X_{fs} (u_f) \quad (3.13)$$

Par analogie avec la corrélation d'Ergun, le coefficient d'échange entre le fluide et le solide X_{fs} est exprimé comme suit :

$$X_{fs} = 150 \frac{\mu_l (1 - \epsilon)}{d_p^2 \epsilon^3} + 1,75 |U_f| \frac{\rho_l}{d_p \epsilon^3} \quad (3.14)$$

où $|U_f|$ est le module de vitesse de la phase fluide f :

$$|U_f| = \epsilon \sqrt{\sum (u_{fi}^2)} \quad (3.15)$$

où i représente les différentes composantes de vitesse (u_r, u_z) dans le cas de géométrie cylindrique bidimensionnelle.

3.1.4 Discrétisation et résolution

Dans cette étude, la variation angulaire (suivant θ) n'est pas prise en compte. Ainsi, la colonne est discrétisée en 2 dimensions, suivant la direction radiale (r) et la direction axiale (z) (figure 3.3).

Pour les modèles de porosité considérés, la variation du taux de vide est beaucoup plus importante au voisinage de la paroi. De ce fait, l'utilisation d'un maillage non uniforme dans la direction radiale est nécessaire. On impose ainsi un maillage plus fin au niveau de la paroi par rapport au reste du réacteur :

$$0 < r \leq 0,8R_c \Rightarrow \Delta r = 0,1R_c = 2,5 \text{ mm} \quad (3.16a)$$

$$0,8 < r \leq R_c \Rightarrow \Delta r = 0,02R_c = 0,5 \text{ mm} \quad (3.16b)$$

La résolution des équations moyennées est effectuée à l'aide de la méthode ALE (voir chapitre 2) implémentée dans le code de calcul CFDLib.

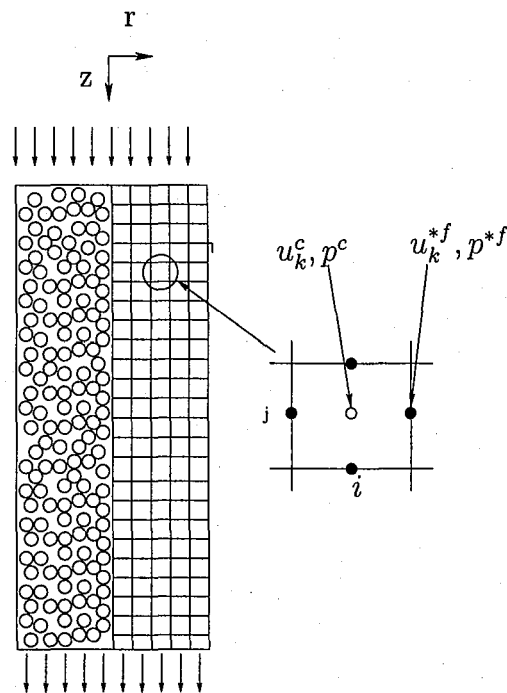


FIG. 3.3 – Schéma de discrétisation en 2D pour un réacteur à lit fixe monophasique dans CFDLib

3.1.5 Résultats et discussions

Les figures 3.4 et 3.5 présentent les distributions radiales de vitesse obtenues avec les modèles de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983) et Mueller (1992) pour différents nombres de Reynolds liquides. L'écoulement préférentiel du fluide dans la zone de porosité élevée est mis en évidence. Dans le cas du modèle de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983), la zone d'écoulement préférentiel s'étale sur une distance de d_p à partir de la paroi. En revanche, en utilisant le modèle de porosité de Mueller (1992), cette distance se réduit à $d_p/2$. En outre, la vitesse du liquide dans la zone à forte porosité augmente avec l'accroissement du nombre de Reynolds. On peut remarquer que les distributions de vitesse suivent le profil de porosité considéré. Cet effet est plus visible avec le modèle de Mueller (1992). Nos résultats sont en accord avec les travaux de Vafai et Kim (1990) et Zoghلامي (1999).

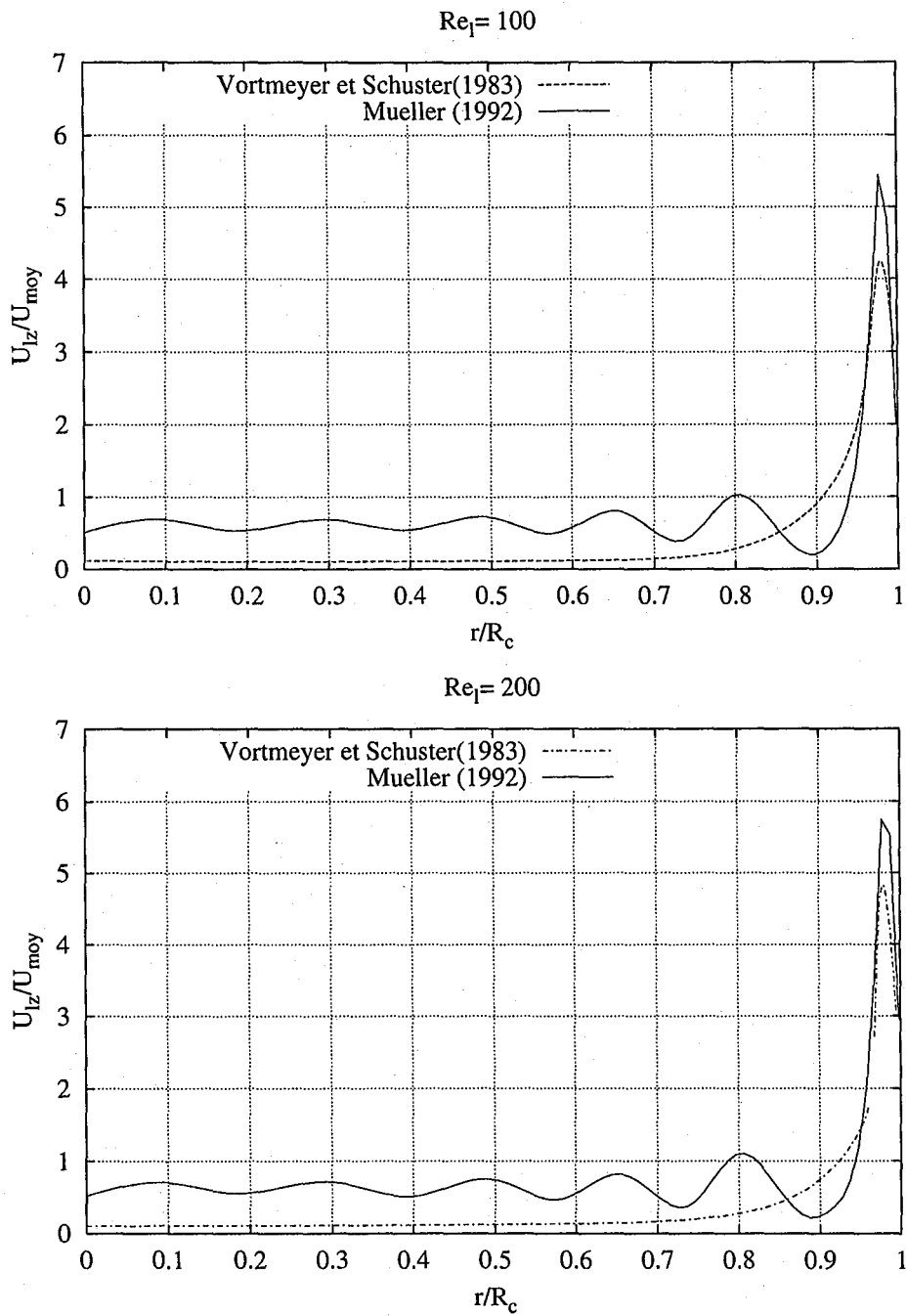


FIG. 3.4 – Profils de vitesse radiale à différents Reynolds ($Re_l = 100, 200$) et à mi-hauteur du réacteur ($z = H/2$)

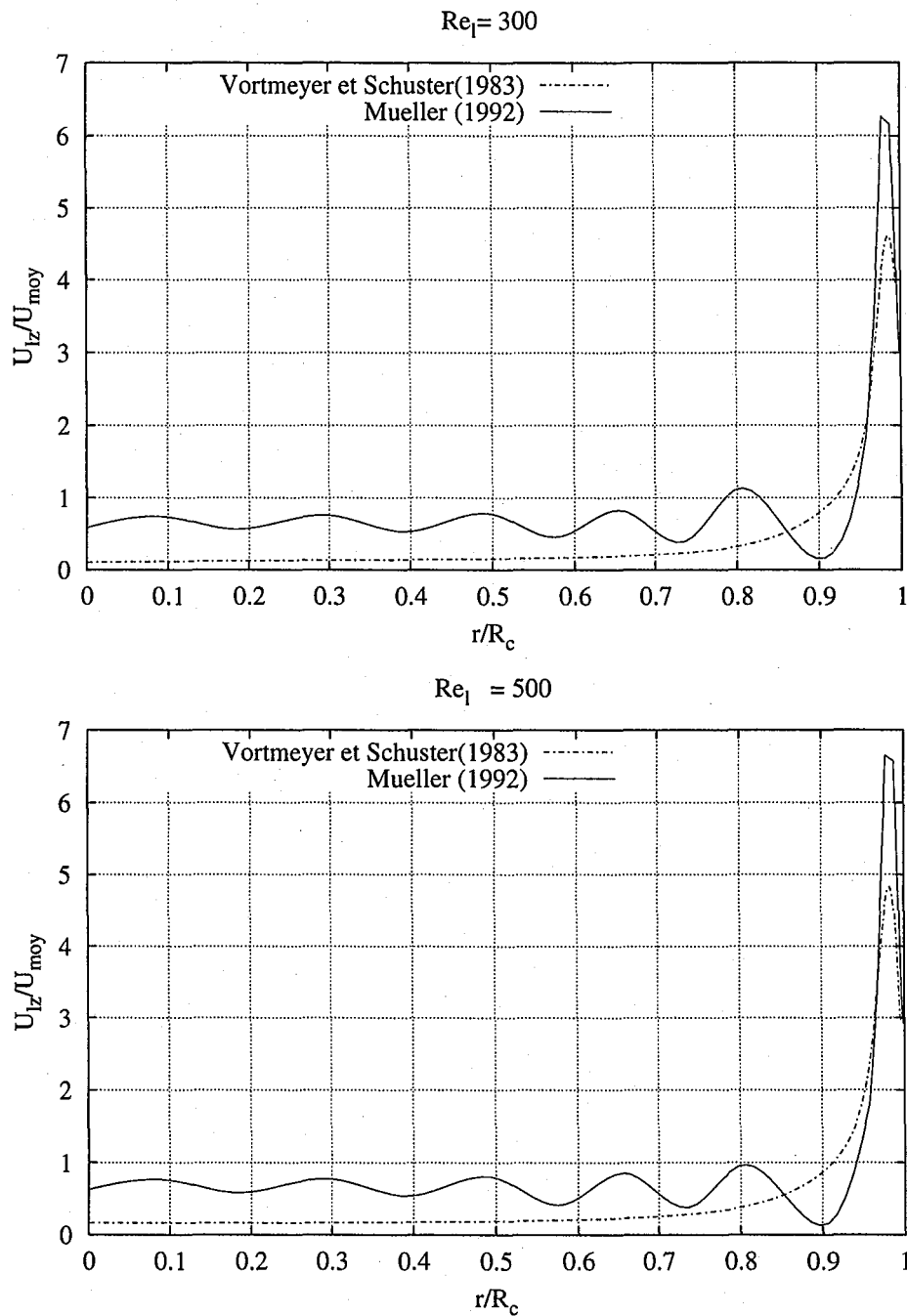


FIG. 3.5 – Profils de vitesse radiale à différents Reynolds ($Re_t = 300, 500$) et à mi-hauteur du réacteur ($z = H/2$)

Les pertes de charge obtenues par simulation en utilisant le modèle de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983) ne diffèrent pas beaucoup de celles résultantes du profil de porosité de Mueller (1992). La comparaison des résultats de simulation avec la corrélation d'Ergun (figure 3.6) montre un accord acceptable; même si les pertes de charge prédites sont toujours plus grandes et l'écart augmente avec le débit liquide. Cet écart est dû au

fait que le modèle de fermeture de type Ergun, utilisé pour décrire les forces d'interaction liquide-solide, est appliqué à l'échelle locale du réacteur (cellule de calcul) ; alors que la corrélation d'Ergun exprime les pertes de charge globales du réacteur (échelle du lit). En outre, le modèle d'Ergun est une relation empirique obtenue pour des porosités moyennes (globales) du lit. Le modèle n'est pas adapté dans le cas de porosités élevées, notamment au voisinage de la paroi.

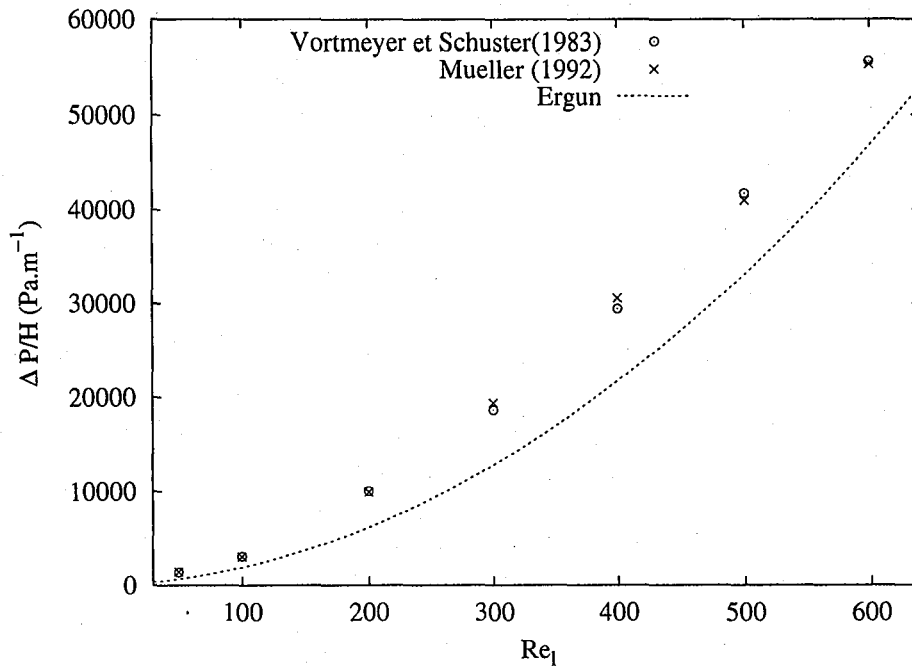


FIG. 3.6 – Comparaison des pertes de charge calculées avec celles fournies par la relation d'Ergun

3.2 Transfert de matière liquide/paroi

Dans cette partie, on va estimer le coefficient de transfert de matière liquide/paroi dans un lit fixe à écoulement de liquide vers le bas. Pour ce faire, le dispositif expérimental de Naderifar(1995), qui a utilisé la méthode électrochimique pour la mesure du coefficient de transfert de matière liquide/paroi, a été choisi.

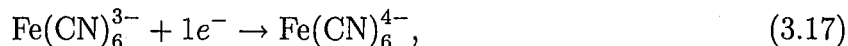
3.2.1 Dispositif expérimental et principe de mesure

Le montage expérimental utilisé par Naderifar (1995) comprend principalement une colonne cylindrique de 5 cm de diamètre intérieur. La colonne est garnie sur une hauteur de 1,30 m de billes de verre de 5 mm de diamètre.

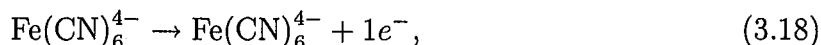
Pour la mise en œuvre des mesures électrochimiques, il faut disposer d'une solution électrolytique contenant un couple électrochimique en faible concentration et un électrolyte support en concentration beaucoup plus importante. Une solution aqueuse contenant

0,5 M de soude constitue l'électrolyte support et les ions d'hexacyanoferrate II et III de potassium sont utilisés comme couple électrochimique.

La réduction de l'ion hexacyanoferrate III $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-}$ a lieu sur l'électrode de travail (cathode) tandis que l'oxydation de l'ion hexacyanoferrate II $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{4-}$ a lieu sur la contre-électrode (anode). Les réactions électrochimiques mises en jeu sont :
réduction à la cathode :



et d'oxydation à l'anode :



L'électrode de travail (cathode) et la contre-électrode (anode) sont constituées de tubes en nickel platinés intérieurement, de hauteur respectives 9 cm et 5 cm (Naderifar, 1995).

Principe de mesure

La méthode consiste à mettre en œuvre une limitation diffusionnelle au niveau de la surface de transfert étudiée dans des conditions telles qu'à la contre-électrode, une telle limitation n'existe pas (le potentiel de cette contre-électrode doit rester sensiblement constant). La courbe intensité-potentiel obtenue pour un couple électrochimique adapté à la mise en œuvre de conditions polarographiques fait apparaître un plateau de diffusion, dont la hauteur conduit à la densité de courant limite i_l à l'électrode de travail (figure 3.7).

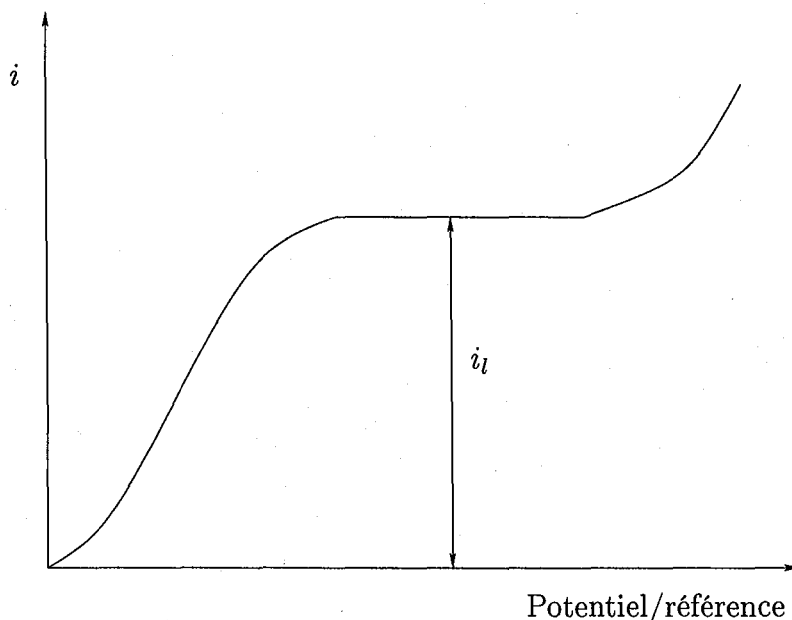


FIG. 3.7 – Tracé schématic d'une courbe intensité-potentiel

Lorsque la migration des ions dans le champs électrique peut être considérée comme négligeable (en présence d'un électrolyte support), le transport de matière au sein de la

solution vers l'électrode s'effectue par un mécanisme de diffusion-convection et la densité de courant limite i_l est reliée au coefficient global de transfert de matière liquide-solide par la relation :

$$i_l = \nu_e \cdot F k_d C_l, \quad (3.19)$$

où ν_e est le nombre d'électrons mis en jeu, F la constante de Faraday et C_l la concentration de l'espèce réagissant à l'électrode.

Si A_e est la surface géométrique de l'électrode de travail et I_{lim} l'intensité du courant limite de diffusion, le coefficient de transfert de matière est déduit de la relation :

$$\phi \bar{k}_d = \frac{I_{lim}}{\nu_e F A_e C_l} \quad (3.20)$$

où ϕ est la fraction d'électrode mouillée par le liquide.

La contre-électrode est rendue impolarisable (potentiel sensiblement constant) en la choisissant de grande surface devant l'électrode de travail (rapport de surfaces de 1 à 100) ou en rendant la densité de courant limite à cette contre-électrode beaucoup plus grande qu'à l'électrode de travail. Ceci peut être obtenu en choisissant une concentration suffisamment grande des ions réagissant à la contre-électrode. La dernière méthode est particulièrement commode lorsque contre-électrode et électrode de travail sont sensiblement de même surface.

Le couple hexacyanoferrate III-hexacyanoferrate II a été utilisé dans cette étude pour déterminer électrochimiquement le coefficient de transfert de matière à l'électrode de travail. Toutefois, d'autres réactions sont envisageables pour mesurer le coefficient de transfert de matière par la méthode électrochimique, on peut citer :

- la réduction de C_e^{4+} en C_e^{3+} ou l'oxydation de C_e^{3+} en C_e^{4+} en milieu sulfurique ; électrode de platine ;
- la réduction de Cu^{++} en Cu en milieu acide sulfurique ; électrode de cuivre ;
- la réduction de O_2 dissout dans KOH ; électrode de platine ou d'argent ;
- la réduction de I^{-3} en I^- en milieu iodure de potassium ; électrode de platine.

La méthode électrochimique a été traitée en détail par Storck et Coeuret (1984).

3.2.2 Formulation du problème

L'objectif de la simulation est de déterminer les profils de concentration dans le réacteur, qui donneront accès ensuite au coefficient de transfert de matière liquide/paroi. L'hydrodynamique est formulée de la même façon que dans la première partie (paragraphe 3.1).

Dans cette étude trois cas de variation de porosité ont été traités :

- la porosité est supposée uniforme et égale à la porosité moyenne du lit ($\epsilon=0,39$)
- la variation de porosité est décrite par le profil radial de Vortmeyer et Schuster (1983)
- utilisation du profil de porosité de Mueller (1992)

L'équation de conservation d'une espèce i dans la phase k peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_i u_k = \nabla \cdot (D_{ik} \nabla \rho_i) \quad (3.21)$$

où ρ_i est la densité de l'espèce i et D_{ik} est le coefficient de dispersion de l'espèce i dans la phase k . Dans notre cas, la phase k représente le liquide et l'hexacyanoferrate III l'espèce i .

Conditions initiales et aux limites

Pour mieux apprécier les conditions aux limites, un schéma simplifié de la colonne est présenté sur la figure 3.8.

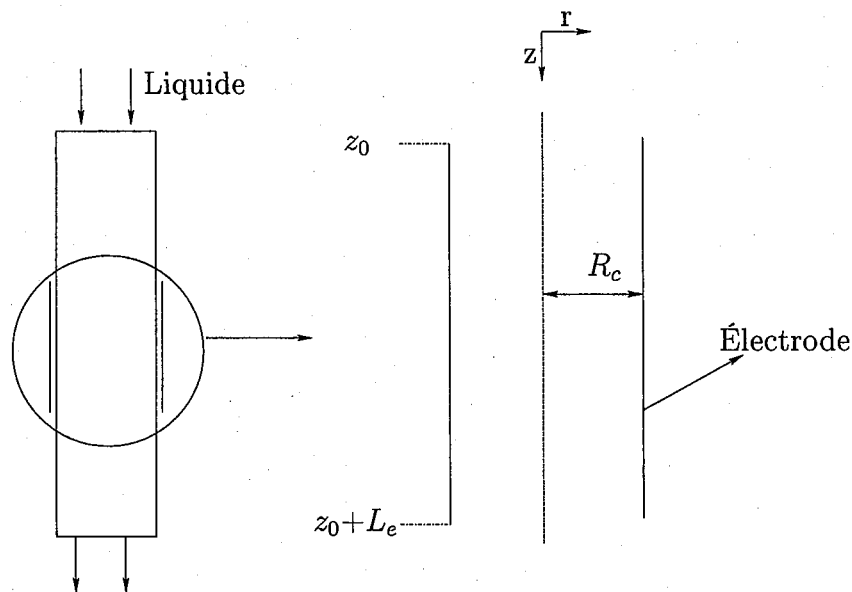


FIG. 3.8 – Schéma simplifié de la zone réactive du réacteur

Les conditions initiales et aux limites des concentrations massiques de l'hexacyanoferrate III sont exprimées ci-dessous :

– initialement on a :

$$0 \leq r \leq R_c, 0 \leq z \leq H, t = 0 \Rightarrow \rho_i = \rho_i^0; \quad (3.22)$$

– à l'entrée de la colonne on a :

$$z = 0 \Rightarrow \rho_i = \rho_i^0, \forall t, \forall r; \quad (3.23)$$

– on considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0 \Rightarrow \frac{\partial \rho_i}{\partial r} = 0; \quad (3.24)$$

– dans la zone réactive, la concentration est nulle à la paroi

$$z_0 \leq z \leq z_0 + L_e \Rightarrow \rho_i(r = R) = 0; \quad (3.25)$$

– à la sortie de la zone réactive le gradient axiale de la concentration est nul

$$z = z_0 + L_e \Rightarrow \frac{\partial \rho_i}{\partial z} = 0. \quad (3.26)$$

La concentration molaire de l'espèce i est déduite de la relation suivante :

$$C_i = \rho_i / M_i. \quad (3.27)$$

Où M_i est la masse molaire de l'espèce i . Le coefficient de dispersion D_{ik} est pris égal au coefficient de diffusion moléculaire ($D = 7,24 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$).

Au niveau de l'électrode de mesure, la concentration de l'ion hexacyanoferrate III est reliée au coefficient de transfert de matière local $k_d(z)$ par :

$$-D \frac{\partial C(r, z)}{\partial r} \Big|_{r=R_c} = k_d(z) (C_0 - C(r = R_c, z)) \quad (3.28)$$

On prendra l'origine de la coordonnée axiale z_0 à l'entrée de la zone réactive, qui est de longueur L_e . On définira une nouvelle coordonnée Z définie comme suit :

$$Z = z - z_0 \quad (3.29)$$

Or $C(r = R_c) = 0$, puisque la mesure est effectuée en appliquant à l'électrode à potentiel correspondant au palier de diffusion. Par ailleurs, on peut considérer que C_0 ne varie pas au cours de la mesure, car le taux de conversion par passe est très faible. On a alors :

$$k_d(z) = -\frac{D}{C_0} \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R_c} \quad (3.30)$$

On peut ensuite intégrer $k_d(z)$ le long de l'électrode (entre $z = z_0$ et $z = z_0 + L_e$) pour obtenir le coefficient de transfert global \bar{k}_d :

$$\bar{k}_d = -\frac{D_l}{L_e C_0} \int_0^{L_e} \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R_c} dZ. \quad (3.31)$$

Soit sous forme adimensionnelle :

$$Sh = \frac{\bar{k}_d d_p}{D_l} = -\frac{d_p}{L_e C_0} \int_0^{L_e} \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R_c} dZ. \quad (3.32)$$

3.2.3 Résultats et discussions

À l'aide de la simulation, on a accès aux profils de concentration des différentes espèces présentes dans la phase liquide et notamment l'hexacyanoferrate III. On peut ainsi estimer le gradient de concentration pour chaque position axiale. Un exemple de profil de concentration pour différentes positions axiales, est donné sur la figure 3.9.

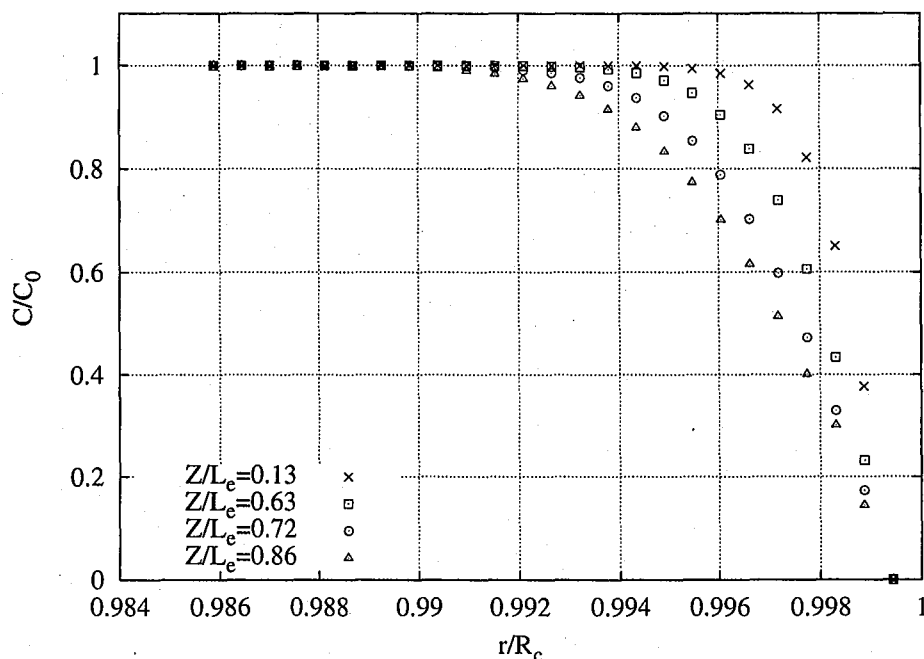


FIG. 3.9 – Profils radiaux de la concentration de $\text{Fe}(\text{CN})_6^{-3}$ pour différentes positions axiales ($Re_l = 78$)

La figure 3.10 compare les résultats de simulation du transfert de matière pour les différents cas de profil de porosité, aux mesures expérimentales de Naderifar (1995) sous la forme adimensionnelle $Sh\phi Sc^{-1/3}$.

On note que les résultats donnés par les deux profils de porosité sont quasiment semblables. Cette faible influence des profils de porosité est due au fait que le transfert a lieu très près de la paroi, soit à un endroit où la porosité donnée par les deux modèles sont sensiblement identiques. Ces observations ont été constatées aussi par Lesage (2000). De plus, les valeurs des coefficients de transfert de matière liquide/paroi obtenues par les deux profils de porosité (Vortmeyer et Schuster (1983); Mueller (1992)) sont relativement plus importantes que celles obtenues dans le cas de porosité uniforme. Cela était prévisible du fait que les débits liquides sont beaucoup plus importants à la paroi pour les deux profils considérés (écoulement préférentiel à la paroi). Néanmoins, les résultats de calcul obtenus pour les trois configurations de porosité, sont en bon accord avec les résultats expérimentaux de Naderifar (1995). De même, les résultats de simulation présentent un bon accord avec les corrélations de la littérature (Smith et King, 1975; Dixon et Labua, 1985; Latifi, 1988) (figure 3.11).

Toutefois, il faut noter que les courbes de transfert de matière données par Naderifar (1995) et Latifi (1988) présentent une cassure. Ce changement de pente a été expliqué par le changement de régime d'écoulement. L'écoulement est passé d'un régime dominé par les forces visqueuses à un régime dominé par les forces inertielles (Naderifar, 1995; Latifi, 1988).

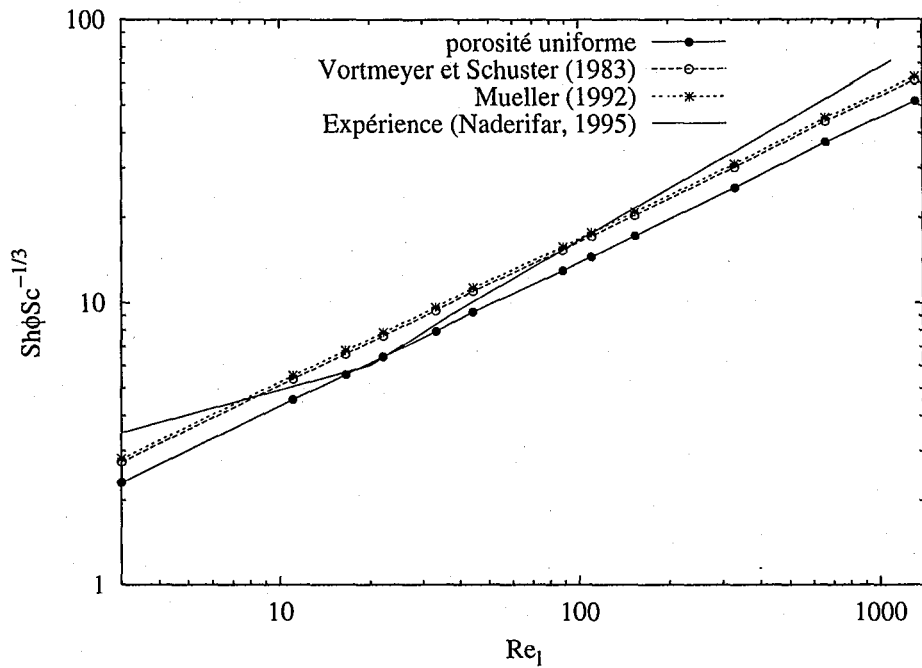


FIG. 3.10 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière liquide/paroi aux mesures expérimentales de Naderifar (1995)

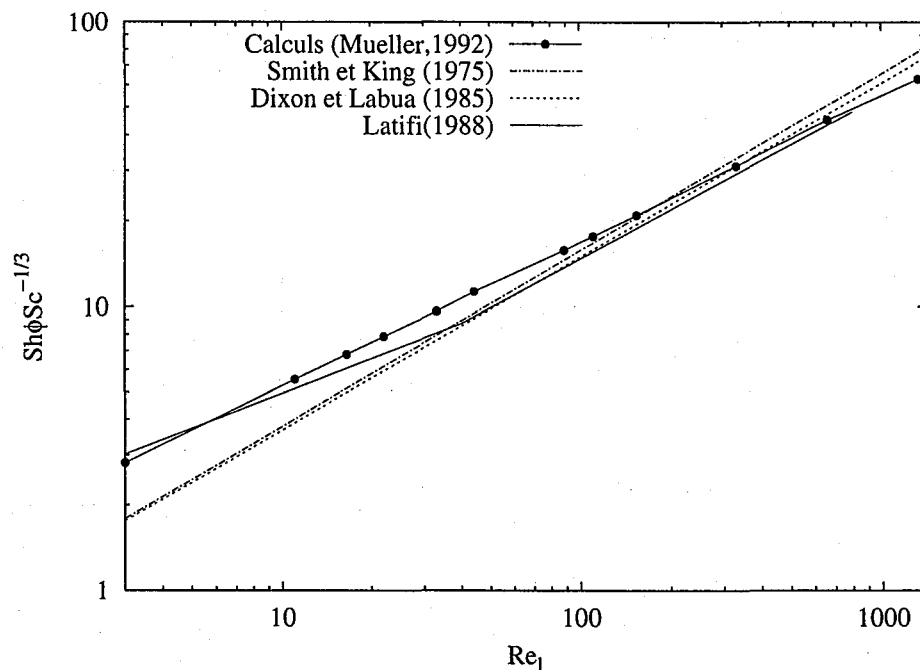


FIG. 3.11 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière liquide/paroi aux corrélations de la littérature

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, la formulation statistique moyennée de Kashiwa et Rauenzahn (1994) a été utilisée pour la simulation de l'hydrodynamique dans un réacteur à lit fixe monophasique et à écoulement vers le bas de liquide. Un modèle de type Ergun a été utilisé pour prendre en compte les forces d'interaction entre le liquide et les particules solides et ainsi fermer le système d'équations. La variabilité radiale de la porosité a été étudiée par le biais de l'implémentation de profils de porosité. Nous avons remarqué que les distributions de vitesse suivent le profil de porosité considéré, notamment à la paroi de la colonne où on distingue très clairement un écoulement préférentiel du liquide. En comparaison avec la corrélation d'Ergun, les résultats de simulation en terme de pertes de charge sont systématiquement surestimés.

Par ailleurs, des simulations du transfert de matière liquide/paroi ont été réalisées pour différents cas de distributions de porosité. Les mesures effectuées par Naderifar (1995) ont été utilisées pour valider les résultats de simulation du transfert de matière liquide/paroi. Les résultats du calcul sont généralement en bon accord avec l'expérience. Toutefois, on peut noter que les coefficients de transfert de matière liquide/paroi obtenus en utilisant les modèles de porosité considérés sont plus importants que dans le cas de porosité uniforme. Cela est dû essentiellement au fait que le transfert a lieu à la paroi, là où la valeur de la porosité, et de la vitesse du liquide sont élevées pour les deux modèles.

Chapitre 4

Simulation des RCLFA en régime ruisselant et dispersé

Les réacteurs à lit fixe et à écoulement vers le bas de gaz et de liquide sont largement répandus dans l'industrie, notamment dans l'industrie pétrolière, les synthèses chimique et électrochimique et dans le domaine des traitements des eaux.

Malgré leur vaste champ d'utilisation, les RCLFA posent toujours des problèmes de dimensionnement et de maîtrise du fonctionnement essentiellement dus à la complexité des phénomènes mis en jeu.

L'objectif de ce chapitre est d'utiliser la formulation statistique moyennée pour la modélisation et la simulation de l'hydrodynamique et le transfert de matière liquide/paroi dans un réacteur gaz/liquide à lit fixe et à écoulement à co-courant vers le bas. Les simulations sont menées pour des régimes d'écoulement à faible interaction (ruisselant) et forte interaction (régime dispersé).

Un troisième régime d'écoulement, appelé communément *régime pulsé induit*, obtenu à l'aide de variations périodiques des débits liquides ou gaz, sera étudié dans le chapitre suivant.

4.1 Hydrodynamique

Cette partie est consacrée à la modélisation de l'hydrodynamique dans un RCFLA. Dans un premier temps, les équations de conservation de la quantité de mouvement pour un écoulement gaz/liquide à travers un lit fixe sont établies ; elles sont ensuite adaptées aux cas des écoulements ruisselant et dispersé.

4.1.1 Formulation du problème

Pour réduire la complexité du problème, quelques hypothèses simplificatrices, mais réalistes sont formulées :

1. Absence de réaction chimique : les termes sources de masse et de quantité de mouvement dus à la conversion des phases sont nuls ;
2. Les contraintes de Reynolds multiphasique sont négligées ($\langle \alpha_k \rho_0 u'_k u'_k \rangle = 0$) ;

3. L'écoulement est en équilibre thermodynamique ($\nabla\theta_k(p_k^0 - p) = 0$);
4. Le transfert de chaleur n'est pas pris en compte.

En tenant compte des hypothèses de travail ci-dessus, les équations de continuité et de quantité de mouvement pour les deux phases fluides s'écrivent alors :

Équation de continuité

$$\frac{\partial \rho_k}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_k u_k = 0; \quad k = g, l \quad (4.1)$$

Équation de mouvement

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_k u_k + \nabla \cdot \rho_k u_k u_k = -\theta \nabla p + \rho_k g + \nabla \cdot \langle \alpha_k \tau_0 \rangle + \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle; \quad k = g, l \quad (4.2)$$

Le terme $\langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle$, exprime le flux de quantité de mouvement échangé entre les différentes phases. Ce terme est modélisé comme étant le produit du coefficient d'échange, X_{k-l} , et leur vitesse interstitielle relative des phases k et l , pondéré par les fractions volumiques respectives :

$$F_{D(k-l)} = \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle = \sum_{k \neq l} \theta_k \theta_l X_{k-l} (u_k - u_l). \quad (4.3)$$

On note que les vitesses, les fractions volumiques et les coefficients d'échange sont définis dans chaque cellule de calcul.

Enfin, deux profils de porosité ont été utilisés pour les deux régimes d'écoulement considérés :

1. profil uniforme, la porosité dans le lit est égale à la porosité moyenne
2. profil exponentiel de Vortmeyer et Schuster (1983)

4.1.2 Conditions initiales et aux limites

Ici, la même configuration géométrique que dans le cas monophasique (Fig. 3.1) est utilisée. Ainsi, les conditions initiales et aux limites sont données comme suit :

- Initialement, la saturation du liquide est égale à 0,15, et le liquide et le gaz s'écoulent respectivement avec une vitesse axiale u_l^i et u_g^i :

$$t = 0 \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad 0 \leq z \leq H \Rightarrow u_{zl} = u_l^i, \quad u_{zg} = u_g^i \quad (4.4a)$$

$$\text{et} \quad s_l^i = 0,15. \quad (4.4b)$$

- Les conditions d'adhérence à la paroi sont imposées :

$$r = R_c, \quad \forall t, \quad \forall z \Rightarrow u_l = u_g = 0, \quad (4.5)$$

- On considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0, \quad \forall t, \quad \forall z \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial u_k}{\partial r} = 0, \quad (4.6)$$

– À la sortie du réacteur, on considère que tous les gradients axiaux sont nuls :

$$z = H, \forall r \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{\partial u_k}{\partial z} = 0 \quad (4.7)$$

– Enfin, à l'entrée on impose des vitesses de gaz et de liquide axiales uniformes et des vitesses radiales nulles :

$$z = 0, \forall r \Rightarrow u_{kz} = u_k^e \quad (4.8a)$$

$$\text{et } u_{kr} = 0. \quad (4.8b)$$

4.1.3 Applications au régime ruisselant

Des modèles d'interactions entre phases sont utilisés pour fermer le système d'équations. Les résultats d'hydrodynamique, en termes de perte de charge et de saturation liquide, seront comparés aux corrélations de la littérature et aux mesures expérimentales.

Modèles de fermeture

Le terme d'échange de quantité de mouvement entre les phases est modélisé à l'aide de l'expression donnée par l'équation 4.3. Dans les conditions d'un régime ruisselant, cet échange est dû aux forces d'interaction solide-fluides (gaz ou liquide) et gaz-liquide. Pour décrire ces interactions, les modèles suivants sont utilisés :

Interaction fluides-solide

Le coefficient d'échange entre les deux phases fluides et le solide, X_{fs} , est exprimé en utilisant le concept de perméabilité relative de Saez et Carbonell (1985), et donné par :

$$X_{fs} = \frac{\theta_f}{k_{rf}\theta_s} \left(150 \frac{\mu_f (1 - \epsilon)^2}{d_p^2 \epsilon^3} + 1,75 \frac{|u_f| \rho_f (1 - \epsilon)}{d_p \epsilon^3} \right). \quad (4.9)$$

La perméabilité relative, k_{rf} , exprime la facilité d'une phase fluide à s'écouler en présence de l'autre. Pour le liquide, elle est donnée par :

$$k_{rl} = \left(\frac{s_l - s_l^0}{1 - s_l^0} \right)^{2,43}, \quad (4.10)$$

où s_l^0 est la saturation résiduelle ou statique, exprimée comme suit :

$$s_l^0 = \frac{1}{\epsilon (20 + E\ddot{o})} \quad (4.11)$$

avec $E\ddot{o}$ le nombre adimensionnel d'Eötvos.

Pour le gaz, la perméabilité relative est modélisée par :

$$k_{rg} = (1 - s_l)^{4,8} \quad (4.12)$$

Interaction gaz-liquide

Le coefficient d'échange entre le gaz et le liquide, X_{gl} , est obtenu en utilisant le modèle d'interaction des deux fluides, développé par Attou et al. (1999) :

$$X_{gl} = \frac{\theta_g}{\theta_l} (A_{gl}\mu_g + B_{gl}\rho_g|V_r|) \quad (4.13)$$

$$\text{avec } A_{gl} = 180 \frac{(1 - \theta_g)^2}{\theta_g^3 d_p^2} \left(\frac{1 - \epsilon}{1 - \theta_g} \right)^{\frac{2}{3}}, \quad (4.14a)$$

$$B_{gl} = 1,8 \frac{(1 - \theta_g)}{\theta_g^3 d_p} \left(\frac{1 - \epsilon}{1 - \theta_g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.14b)$$

$$\text{et } V_r = \theta_g (u_g - u_l). \quad (4.14c)$$

Par ailleurs, Dankworth et al. (1990) ont développé les modèles suivants pour les interactions entre phases :

Forces exercées sur le gaz

Elles englobent les interactions du gaz avec la phase liquide et avec la phase solide, et sont données par :

$$F_g = - \left[\frac{A\mu_g(1 - \epsilon)^2 \epsilon^{1,8}}{d_e^2 \theta_g^{2,8}} + \frac{B\rho_g(1 - \epsilon)}{d_e \theta_g^{1,8}} |u_g - u_l| \right] (u_g - u_l). \quad (4.15)$$

Forces exercées sur le liquide

Elles tiennent compte de l'effet du gaz et du solide, et sont fournies par :

$$F_l = - \left[\frac{\epsilon - \theta_l^0}{\theta_l - \theta_l^0} \right]^{2,43} \left[\frac{A\mu_l(1 - \epsilon)^2 \theta_l^2}{d_e^2 \epsilon^3} + \frac{B\rho_l(1 - \epsilon)^3 \theta_l^3}{d_e^2 \epsilon^3} |u_l| \right] u_l - F_g, \quad (4.16)$$

où A et B sont les constantes d'Ergun et θ_l^0 la fraction liquide statique.

Pour des raisons de conformité avec le modèle d'interaction entre phases (Eq.4.3) et avec le code de calcul, nous avons supposé que les forces exercées sur le gaz ne représentent que les forces d'interaction gaz-solide. Et les forces exercées sur le liquide se réduisent à l'interaction liquide-solide. Ainsi, les coefficients d'échange de quantité de mouvement respectivement pour le gaz et le liquide, sont exprimés par :

$$X_{gs} = \frac{F_g}{\theta_g \theta_s u_g} = - \left[\frac{A\mu_g(1 - \epsilon)^2 \epsilon^{1,8}}{d_e^2 \theta_g^{2,8}} + \frac{B\rho_g(1 - \epsilon)}{d_e \theta_g^{1,8}} |u_g - u_l| \right] \frac{(u_g - u_l)}{\theta_g \theta_s u_g} \quad (4.17)$$

$$X_{ls} = \frac{F_l}{\theta_l \theta_s u_g} = - \left[\frac{\epsilon - \theta_l^0}{\theta_l - \theta_l^0} \right]^{2,43} \left[\frac{A\mu_l(1 - \epsilon)^2 \theta_l^2}{d_e^2 \epsilon^3} + \frac{B\rho_l(1 - \epsilon)^3 \theta_l^3}{d_e^2 \epsilon^3} |u_l| \right] \frac{1}{\theta_l \theta_s} - \frac{X_{gs} u_g \theta_g}{u_l \theta_l} \quad (4.18)$$

$$X_{lg} = 0 \quad (4.19)$$

D'autre part, dans un premier temps la pression capillaire, p_c , est prise en compte en utilisant la relation suivante :

$$p_c = \sqrt{\frac{\epsilon}{K}} \sigma_l \zeta(s_l) \quad (4.20)$$

où ζ est la fonction de Leverett (Leverett (1941)) :

$$\zeta(s_l) = 0,48 + 0,036 \ln\left(\frac{1-s_l}{s_l}\right) \quad (4.21)$$

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

$$K = \frac{\epsilon^3 d_p^2}{A(1-\epsilon)^2} \quad (4.22)$$

Par la suite, la pression capillaire a été négligée car elle est peu influente, du moins pour les conditions opératoires utilisées, sur les résultats de simulation. Les résultats présentés par la suite sont ainsi donnés en absence de pression capillaire.

En utilisant les modèles de fermeture, des simulations d'écoulement dans un RCLFA pour un profil uniforme et variable (Vortmeyer et Schuster, 1983), ont été effectuées. Les résultats obtenus sont présentés dans les paragraphes suivants.

Profil uniforme de porosité

Comme dans tout le long de cette étude, les variations azimutales ne sont pas prises en compte. Puisque la porosité est uniforme dans tout le lit, le maillage considéré sera régulier dans la direction radiale et la direction axiale (figure 4.1). Les équations discrétisées sont résolues en utilisant le schéma ALE implémenté dans le code de calcul CFDLib (voir Chapitre 2.4).

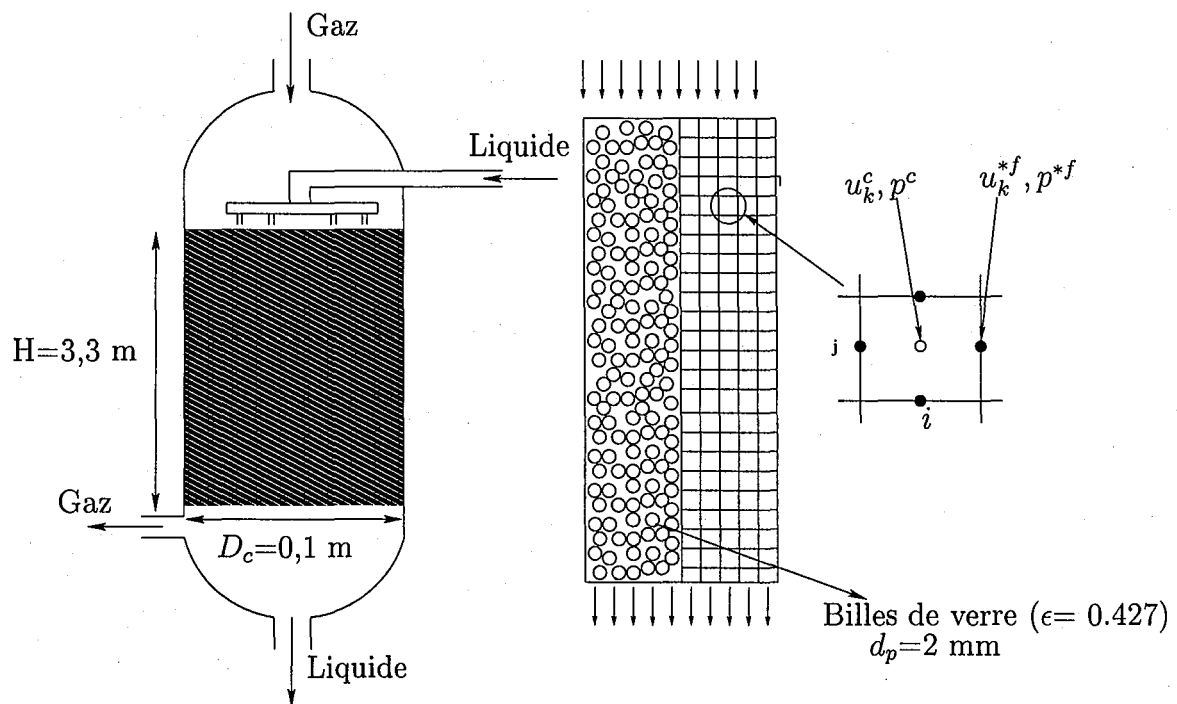


FIG. 4.1 – Dimensions du réacteur et schéma de discrétisation en 2D dans CFDLib

La figure 4.2 présente un exemple de simulation pour une vitesse superficielle de liquide $U_l = 0,007 \text{ m/s}$ et une vitesse de gaz $U_g = 0,066 \text{ m/s}$ après un temps de calcul de $t = 40 \text{ s}$.

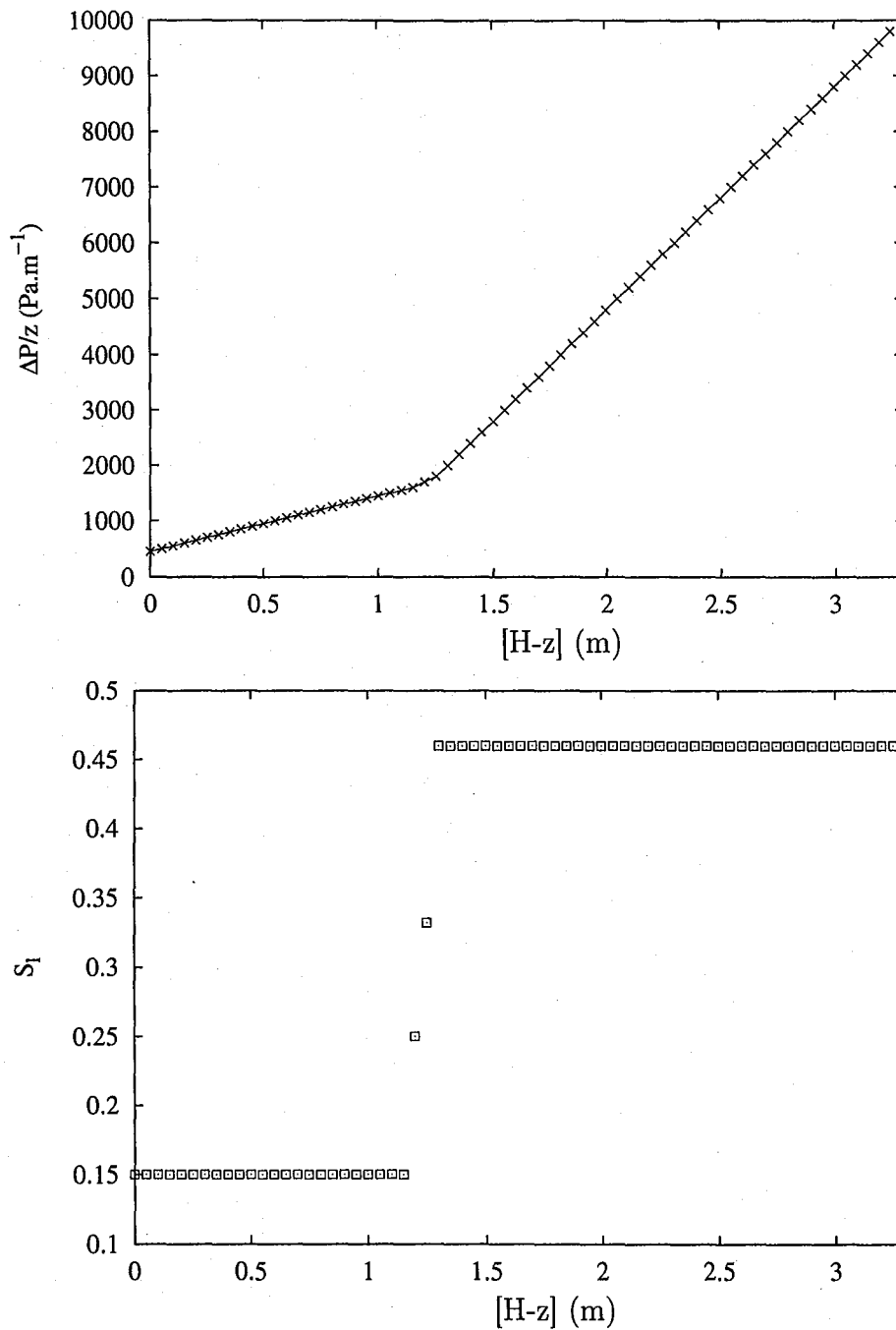


FIG. 4.2 – Profil de pression et de saturation pour $t = 40$ s ($U_l = 0,007$ m/s et $U_g = 0,066$ m/s).

On remarque que la saturation du liquide présente un front de propagation qui se déplace avec une vitesse dont la valeur peut être déduite de l'équation de continuité (Eq. 4.1). Le profil de pression présente une cassure à la même position axiale que le front de saturation du liquide. Ces résultats montrent que les problèmes numériques ont été correctement traités.

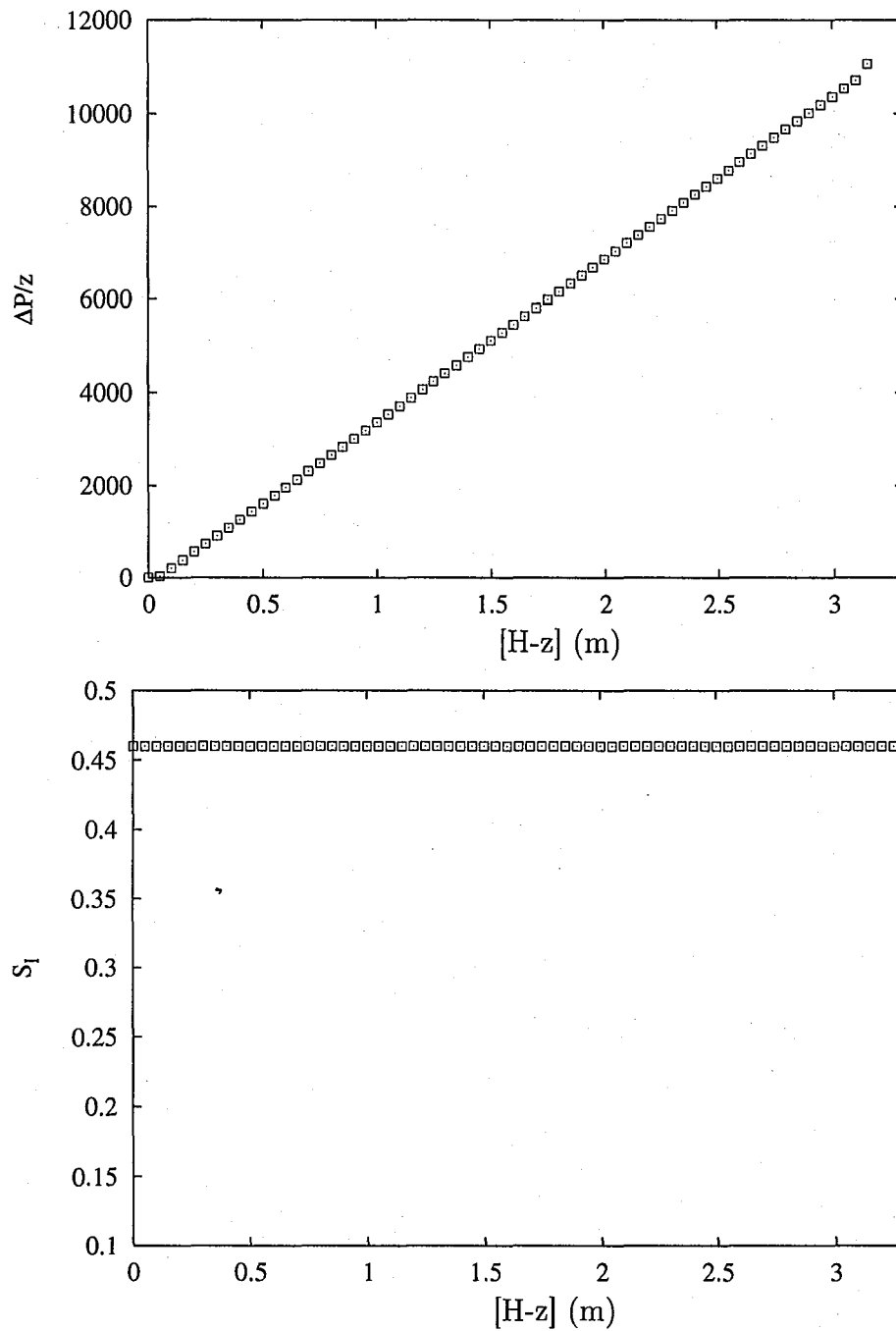


FIG. 4.3 – Profil de pression et de saturation pour $t = 65$ s ($U_l = 0,007$ m/s et $U_g = 0,066$ m/s).

Pour un temps de simulation égal à 65 s (figure 4.3), la saturation du liquide devient uniforme et le profil de pression est linéaire. La durée au bout de laquelle la saturation devient uniforme est appelée temps de propagation τ_p . Nos résultats sont en bon accord avec ceux de Propp (1998) et de Souadnia et Latifi (2001).

Pour toutes les simulations effectuées, le temps de propagation du front, τ_p , est toujours inférieur au temps de séjour moyen du liquide, ce qui est en accord avec les résultats de Propp (1998). En effet, en absence de gravité (Ex. écoulement horizontal), la vitesse de propagation est égale à la vitesse moyenne de l'écoulement. Alors qu'en présence du terme de gravité, la vitesse de propagation est supérieure à la vitesse moyenne. En effet, elle est donnée par la somme de la vitesse moyenne et un terme qui dépend de la gravité (Propp, 1998). La figure 4.4 présente une comparaison entre les valeurs de saturation liquide déterminées par simulation et estimées par la formulation pression-saturation de Propp (1998) pour des vitesses de propagation identiques. Les saturations du liquide prédites sont en bon accord avec celles de Propp (1998) (voir Chap.2).

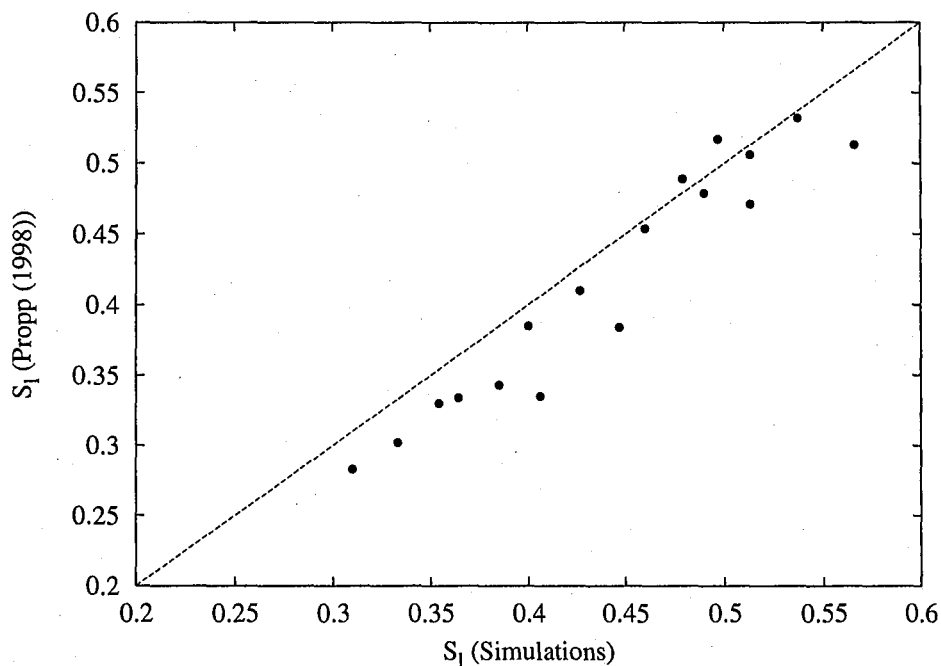


FIG. 4.4 – Comparaison des saturations de liquide obtenues par simulation et par la formulation pression-saturation de Propp (1998) pour des vitesses de propagation identiques.

Les simulations ont été réalisées pour les différentes équations de fermeture présentées plus haut. Dans un premier temps, les forces d'interaction fluides-solide sont prises en compte à l'aide du concept de perméabilité relative de Saez et Carbonell (1985). Dans un deuxième temps, les effets des interactions gaz-liquide sont introduits à l'aide du modèle des deux fluides d'Attou et al. (1999). Dans un troisième et dernier temps, des simulations ont été menées en utilisant le modèle de Dankworth et al. (1990) pour différents débits de liquide et de gaz.

La figure 4.5 présente la comparaison des pertes de charge mesurées par Marcandelli (1999) et calculées en utilisant les différents modèles de fermeture.

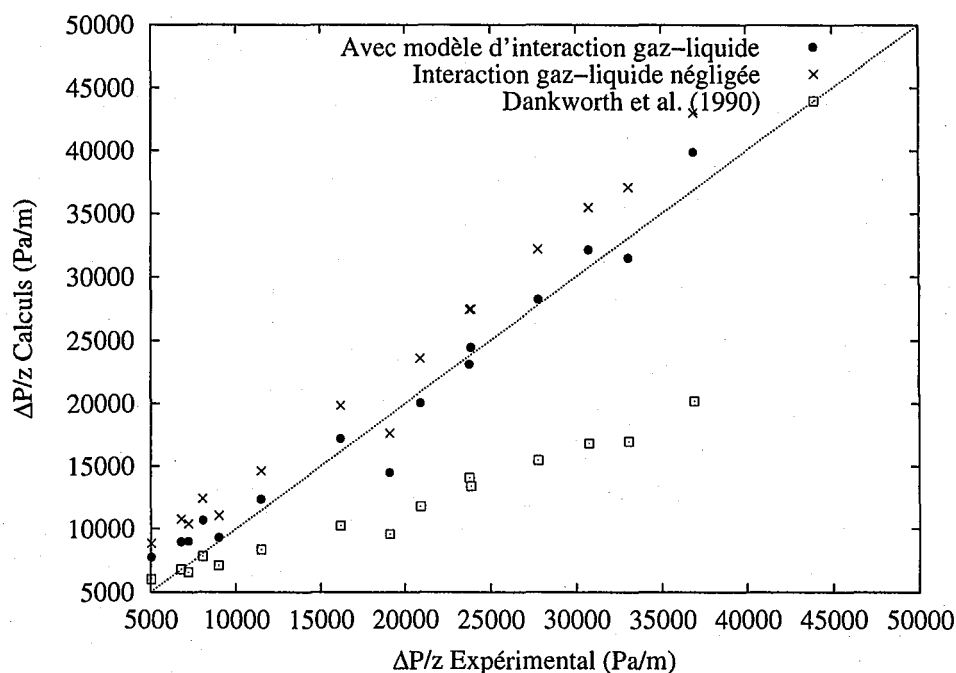


FIG. 4.5 – Comparaison des pertes de charge mesurées et calculées pour différents modèles de fermeture.

Les simulations présentées ici correspondent au régime ruisselant et les interactions gaz/liquide sont par conséquent relativement faibles. La figure 4.5 montre que les résultats obtenus avec et sans interactions gaz/liquide prédisent bien les mesures expérimentales. Toutefois, les résultats obtenus en prenant en compte les interactions gaz/liquide sont meilleurs. Par contre, les résultats de pertes de charges obtenus en utilisant le modèle de Dankworth et al. (1990) présentent un écart important par rapport aux résultats expérimentaux. Cet écart augmente avec les débits des phases fluides notamment la phase liquide. C'est probablement dû au fait que ce modèle a été établi pour tous les régimes d'écoulement, y compris le régime pulsé. De plus, les interactions gaz-liquide ont été déterminées pour le cas de saturation du liquide élevée.

De la même manière que les pertes de charge, les saturations du liquide pour différents modèles de fermeture, sont comparées à la corrélation d'Ellman et al. (1990) dans la figure 4.6. Ici aussi, les saturations liquide sont mieux estimées en prenant en compte les interactions gaz-liquide. D'autre part, la figure 4.7 montre un bon accord entre les résultats de simulation et les corrélations de la littérature (Specchia et Baldi, 1977; Ellman et al., 1990; Larachi, 1991) en terme de saturation de liquide.

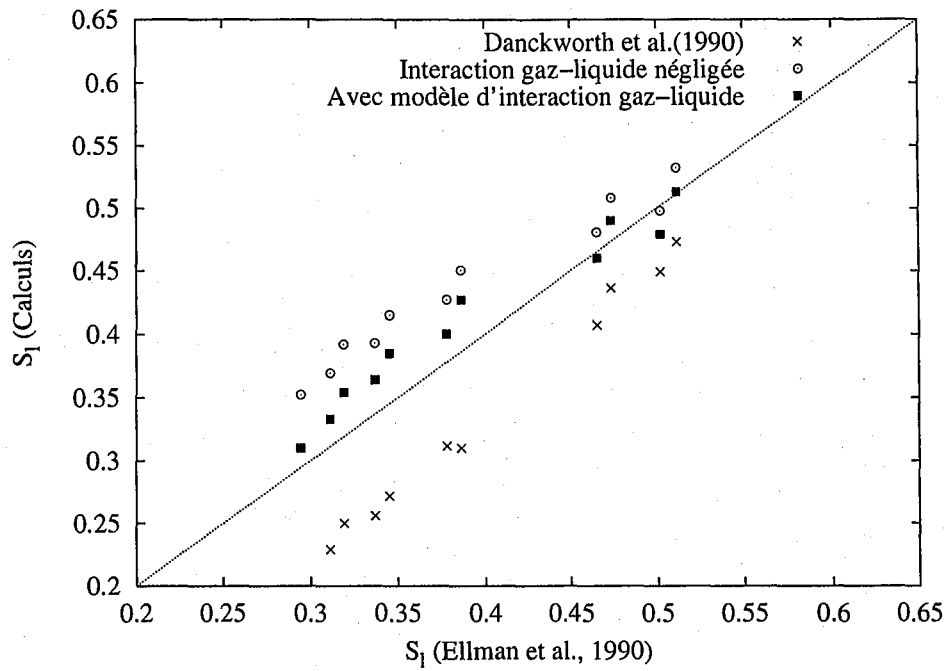


FIG. 4.6 – Comparaison de la saturation du liquide donnée par Ellman et al. (1990) et calculée pour différents modèles de fermeture.

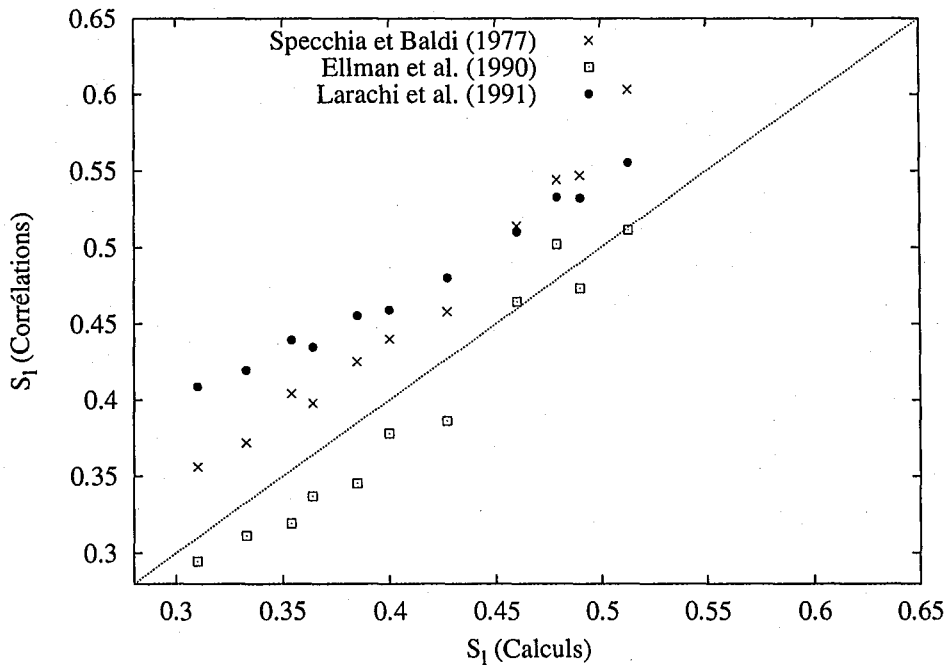


FIG. 4.7 – Comparaison des saturations du liquide calculées aux corrélations de la littérature.

Profil de porosité non uniforme

Des simulations ont également été effectuées pour un profil de porosité variable de Vortmeyer et Schuster (1983) à différents débits gazeux et liquides. Les mêmes modèles de fermeture pour les forces d'interactions entre phases sont utilisés. Par contre, le maillage utilisé pour la discrétisation du réacteur n'est plus régulier : comme la variation de porosité est très importante au voisinage de la paroi, le maillage a été affiné dans cette zone ($\Delta r = 0,036R_c$).

La figure 4.8 présente la variation radiale de la saturation locale du liquide à différentes vitesses de gaz et de liquide. On constate que la saturation liquide suit l'inverse de la porosité et atteint des valeurs relativement faibles à la paroi (de l'ordre de 0,1). Cette tendance a été constatée expérimentalement par Yin et al. (2002) qui ont utilisé la tomographie à rayon gamma pour l'étude des distributions des rétentions liquide. Ce comportement s'explique de la manière suivante :

Au voisinage de la paroi, le gaz et le liquide essaient d'occuper l'espace interstitielle, notamment à cause des pertes de charge qui sont faibles. Par ailleurs, les forces visqueuses du gaz sont plus faibles que celles du liquide, au niveau de la paroi. Le liquide a donc tendance à s'écouler sur la paroi, alors que le gaz occupe la zone adjacente avec une proportion volumique élevée.

La saturation globale est déterminée en effectuant une moyenne surfacique des saturations locales radiale :

$$s = \frac{\sum_{i=1}^n s_i \pi (r_i^2 - r_{i-1}^2)}{\pi R_c^2}, \quad (4.23)$$

où n est le nombre de cellules suivant la direction radiale.

Les résultats globaux en terme de pertes de charge et de saturation globale du liquide, dans les cas de porosité uniforme et variable, sont sensiblement identiques. Les comparaisons présentées précédemment restent par conséquent valables. L'avantage majeur ici, est que nous disposons de distributions locales.

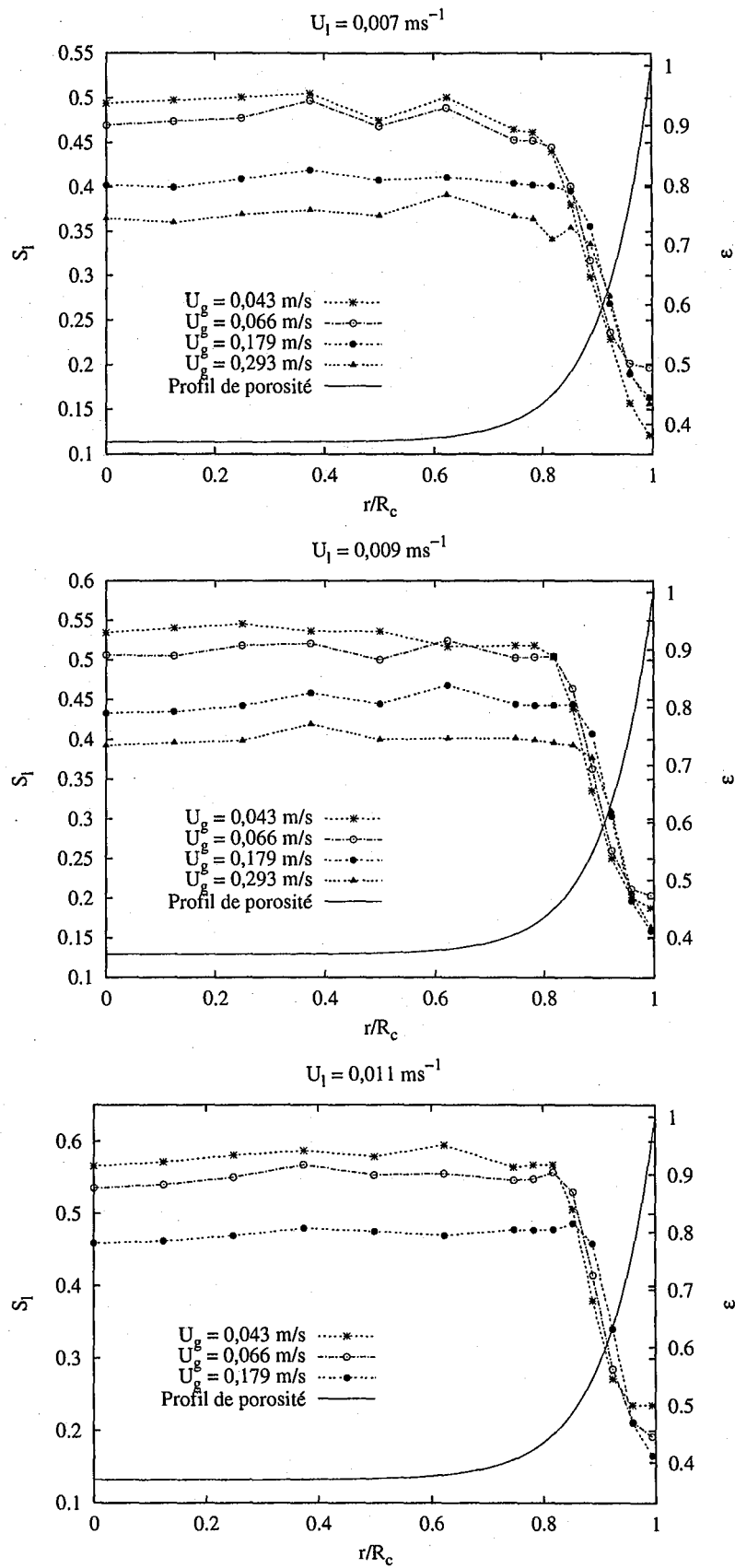


FIG. 4.8 – Variations radiales de la saturation locale du liquide pour le profil de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983).

Distributions des phases fluides

Dans ce paragraphe la distribution des phases fluides dans les RCLFA est étudiée. Les résultats de simulation sont comparés aux mesures de la maldistribution effectuées par Marcandelli (1999). Elle a utilisé, entre autres, un réacteur de 0,3 m de diamètre et 1,3 m de hauteur de garnissage composé de billes de verre de 2 mm de diamètre. Le distributeur choisi assure une bonne distribution de l'alimentation (utilisation d'un plateau avec 25 perforations pour le liquide). Un dispositif de collecte du liquide a été utilisé pour déterminer le profil de vitesse du liquide en sortie du lit. Le collecteur expérimental utilisé est décomposé en neuf zones (Fig. 4.9.a).

En simulation le modèle de porosité variable (Vortmeyer et Schuster, 1983) est utilisé, et la distribution de l'alimentation à l'entrée de la colonne est supposée uniforme.

Comme la variation azimutale (étude en 2D) est négligée tout le long de cette étude, les neuf zones sont réduites à trois zones (Fig. 4.9.b).

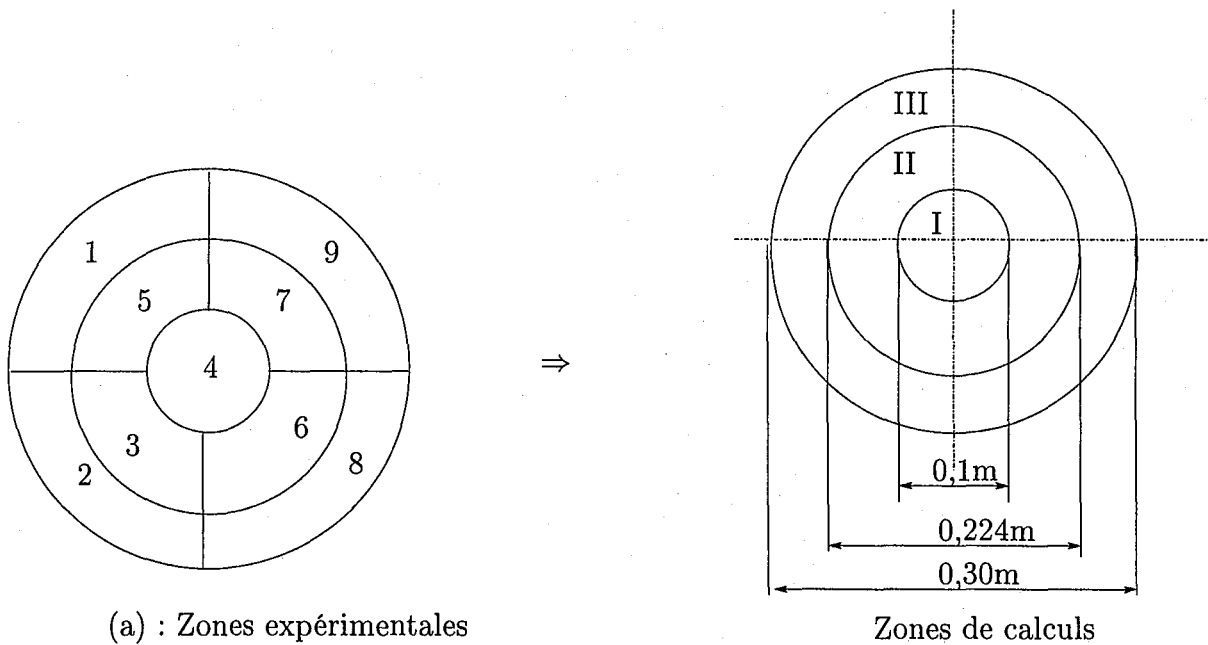


FIG. 4.9 – Zones de distribution considérées.

Les fractions de débit de liquide pour les trois zones considérées sont données comme suit :

$$\%Q_1 = \frac{\int_0^{r_1} u_i \theta_i 2\pi r dr}{\int_0^{R_c} u_i \theta_i 2\pi r dr} \quad (4.24a)$$

$$\%Q_2 = \frac{\int_{r_1}^{r_2} u_i \theta_i 2\pi r dr}{\int_0^{R_c} u_i \theta_i 2\pi r dr} \quad (4.24b)$$

$$\%Q_3 = \frac{\int_{r_2}^{R_c} u_i \theta_i 2\pi r dr}{\int_0^{R_c} u_i \theta_i 2\pi r dr} \quad (4.24c)$$

En utilisant les résultats de simulation en termes de fraction de liquide et de vitesse interstitielle, la fraction de débit de liquide passant dans chaque zone sera estimée.

Les résultats concernant la distribution du liquide sont résumés dans les tableaux 4.1 et 4.2. On peut remarquer que plus la vitesse de gaz et de liquide sont grandes plus la zone centrale (zone I) s'appauvrit en liquide. C'est la zone adjacente à la paroi qui reçoit le liquide chassé du centre. Cette tendance a été remarquée dans les travaux expérimentaux de Marcandelli (1999) et par Saroha et al. (1998).

TAB. 4.1 – Variations de la distribution liquide avec le débit de gaz ($U_l = 0,003 \text{ ms}^{-1}$).

	Zone I	Zone II	Zone III
$U_g = 0,03 \text{ ms}^{-1}$	14,89 %	34,93 %	50,18 %
$U_g = 0,05 \text{ ms}^{-1}$	13,59 %	32,29 %	54,12 %
$U_g = 0,075 \text{ ms}^{-1}$	12,08 %	26,89 %	61,03 %
$U_g = 0,10 \text{ ms}^{-1}$	8,66 %	25,44 %	65,90 %
$U_g = 0,15 \text{ ms}^{-1}$	6,95 %	23,63 %	69,42 %

TAB. 4.2 – Variations de la distribution liquide avec le débit liquide ($U_g = 0,05 \text{ ms}^{-1}$).

	Zone I	Zone II	Zone III
$U_l = 0,003 \text{ ms}^{-1}$	13,59 %	32,29 %	54,12 %
$U_l = 0,005 \text{ ms}^{-1}$	10,80 %	26,34 %	62,86 %
$U_l = 0,006 \text{ ms}^{-1}$	9,11 %	25,63 %	65,26 %
$U_l = 0,0075 \text{ ms}^{-1}$	7,35 %	24,03 %	68,52 %
$U_l = 0,011 \text{ ms}^{-1}$	6,52 %	21,03 %	72,45 %

Un exemple de comparaison entre les résultats de calculs et les résultats expérimentaux est donné dans le tableau 4.3.

TAB. 4.3 – Exemple de Comparaison entre les calculs et l'expérience ($U_l=0,003 \text{ ms}^{-1}$ et $U_g=0,05 \text{ ms}^{-1}$).

	Marcandelli (1999)	Calculs
Zone I	25%	13,59%
Zone II	35%	32,29%
Zone III	40%	54,12%

On peut remarquer que les résultats de simulations sont moyennement en accord avec l'expérience. C'est plus particulièrement la zone centrale (zone I) où l'erreur est importante. Cela peut s'expliquer par le fait que le profil considéré n'est pas adapté à la colonne

étudiée. Il serait plus judicieux, pour l'étude de la distribution des phases fluides, d'implémenter des mesures expérimentales de porosité. Par ailleurs, les modèles de fermeture ne sont pas adaptés au cas de porosité élevée. Ce qui est le cas dans la zone adjacente à la paroi.

Modèle à deux zones

Bien que présentant des résultats corrects, les modèles de fermetures utilisés sont inadaptés dans la zone de paroi. En effet, la porosité dans cette zone est très élevée comparée aux autres régions de la colonne. Pour les profils utilisés, la valeur de la porosité est très proche de 1 au voisinage de la paroi. Pour tenir compte de cette particularité, il serait plus judicieux de séparer le voisinage de la paroi du reste du lit. Dans ce cas, la simulation concernera un écoulement gaz/liquide au voisinage de la paroi, et un écoulement gaz/liquide/solide dans le reste du lit.

Les équations de continuité et de quantité de mouvement (respectivement Eq. 4.1 et Eq. 4.2) et les conditions initiales et aux limites associées, sont les mêmes que celles précédemment utilisées (paragraphe 4.1.1 et 4.1.2). En outre, la distribution radiale de porosité est représentée par le profil de Vortmeyer et Schuster (1983).

L'hydrodynamique dans le RCLFA a été ainsi résolue en considérant deux zones :

Zone à faible porosité (zone centrale) :

Dans cette zone, les trois phases (gaz, liquide et solide) sont considérées. Les équations de fermetures sont les mêmes que celles utilisées précédemment (modèle de perméabilité relative de Saez et Carbonell (1985) et modèle des deux fluides de Attou et al. (1999)).

Zone à forte porosité (zone pariétale) :

Dans cette zone, on considère uniquement les deux phases fluides, gaz et liquide. Les forces d'interaction fluides-solide sont ainsi négligées. Les interactions gaz-liquide sont modélisées par le modèle d'écoulement stratifié stable (Midoux, 1988) (Fig.4.10).

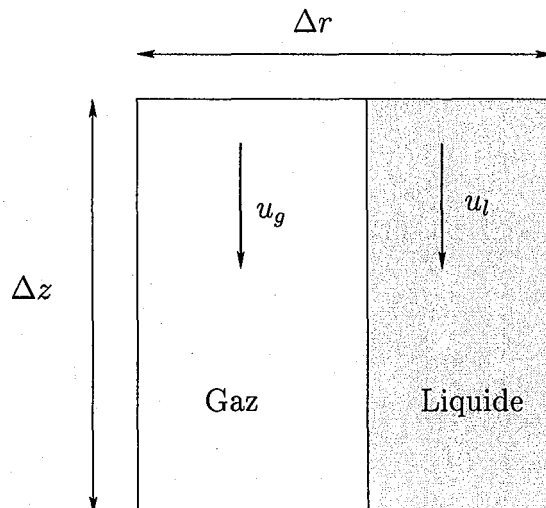


FIG. 4.10 – Représentation d'un écoulement stratifié dans une cellule de calcul

Le passage entre les deux zones dépend de la valeur de la porosité (dans cette étude la valeur de la porosité de transition, $\epsilon_{tr}=0,9$) :

- $\epsilon < 0,9 \Rightarrow$ zone centrale
- $\epsilon \geq 0,9 \Rightarrow$ zone pariétale

Les forces d'interaction gaz-liquide pour un écoulement stratifié stable, sont exprimées comme suit (Midoux, 1988) :

$$F_{gl} = C_f \frac{\rho_g (u_g - u_l)^2}{2} S_{gl} = \theta_l \theta_g X_{gl} (u_g - u_l) \quad (4.25)$$

Soit

$$X_{gl} = C_f \frac{\rho_g (u_g - u_l) Per_{gl}}{2\theta_l \theta_g} \quad (4.26)$$

Les simulations sont faites en deux dimensions, suivant la direction radiale et axiale. La surface de contact gaz-liquide, S_{gl} , est réduite ainsi au périmètre de contact gaz-liquide, Per_{gl} .

C_f est le coefficient de frottement à l'interface gaz-liquide. Il est déterminé à l'aide de la formule de Blasius en régime laminaire (Midoux, 1988) :

$$C_f = 8 \left(\frac{u_g D_{hg}}{\nu_g} \right)^{-1} \quad (4.27)$$

avec D_{hg} le diamètre hydraulique rapporté à la fraction volumique du gaz :

$$D_{hg} = \theta_g \frac{4\pi R_c^2}{Per_{gl}} \quad (4.28)$$

Les modèles de fermeture sont ainsi résumés dans ce qui suit :

- $\epsilon < 0,9$ on a :
 - interaction fluides-solide, $X_{fs} \Rightarrow$ équation 4.9
 - interaction gaz-liquide, $X_{gs} \Rightarrow$ équation 4.13
- $\epsilon \geq 0,9$ on a :

$$X_{gl} = C_f \frac{\rho_g (u_g - u_l) Per_{gl}}{2\theta_l \theta_g} \quad (4.29)$$

$$X_{fs} = 0 \quad (4.30)$$

En utilisant ces modèles de fermeture des simulations ont été effectuées à l'aide du code CFDLib. Les résultats de simulation sont comparés à ceux obtenus précédemment en ne considérant qu'une zone unique (modèle à une zone).

Résultats du modèle à deux zones

Les figures 4.11, 4.12 et 4.13 présentent la comparaison des profils radiaux de vitesse liquide du modèle à deux zones et du modèle à une seule zone. Ces simulations ont été

effectuées pour une vitesse de gaz $U_g=0,179$ m/s et des vitesses de liquide respectivement $U_l= 7, 9, 11$ mm/s.

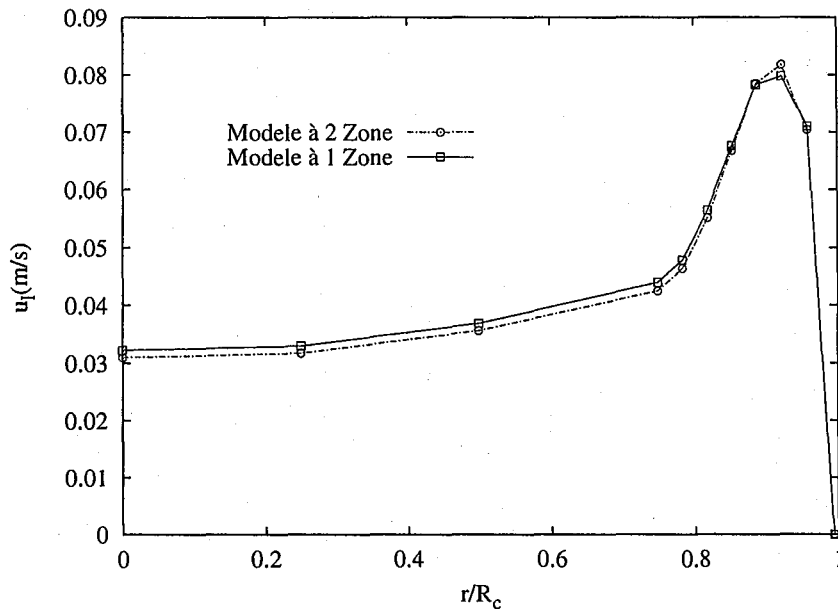


FIG. 4.11 – Comparaison des profils radiaux de vitesse en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=7$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone pariétale})= 0,036R_c$).

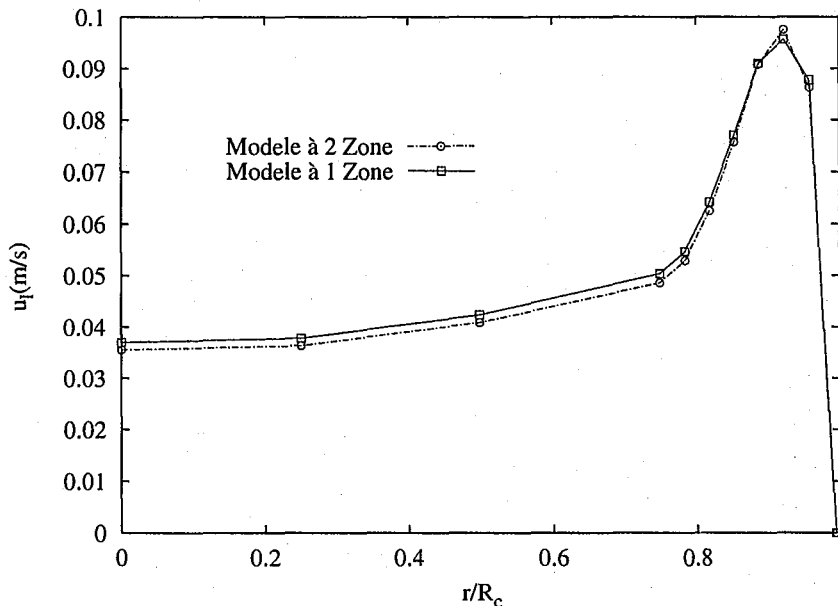


FIG. 4.12 – Comparaison des profils radiaux de vitesse en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=9$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone pariétale})= 0,036R_c$).

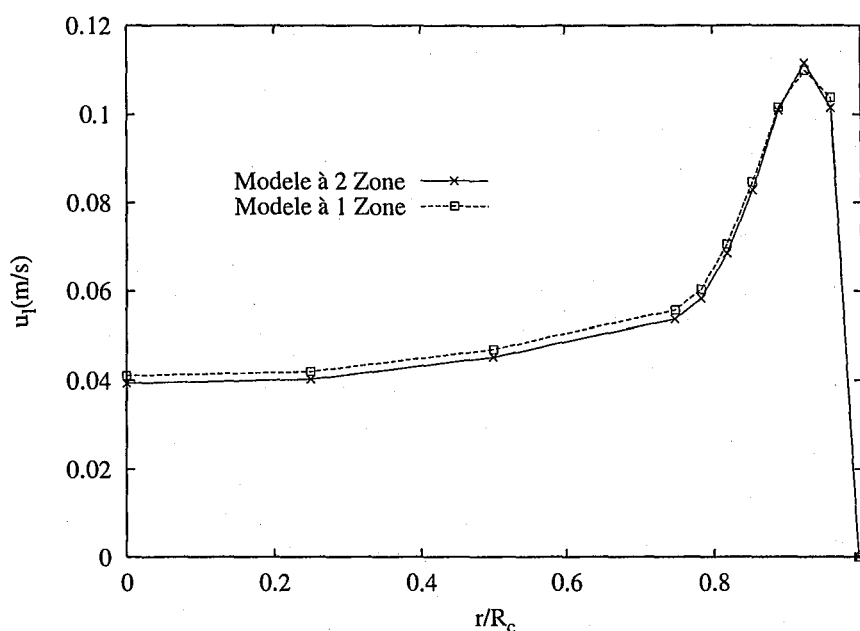


FIG. 4.13 – Comparaison des profils radiaux de vitesse en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=11$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone pariétale})=0,036R_c$).

Comme c'est le cas en écoulement monophasique (Chap. 3), on remarque aussi bien avec le modèle à une zone qu'avec le modèle à deux zones, l'existence d'un écoulement préférentielle vers la zone à forte porosité (au voisinage de la paroi). On peut noter aussi que la vitesse à forte porosité augmente avec la vitesse moyenne du liquide. Concernant la comparaison des résultats des deux modèles, on peut constater que les profils radiaux de vitesse sont sensiblement identiques.

Par ailleurs, les variations radiales de la saturation du liquide pour une vitesse de gaz $U_g=0,179$ m/s et des vitesses de liquide $U_l=7, 9, 11$ mm/s sont présentées respectivement sur les figures 4.14, 4.15, 4.16. De la même manière que précédemment (paragraphe 4.1.3), les saturations du liquide suivent l'inverse de la porosité et atteignent des valeurs relativement faibles à côté de la paroi. Les profils radiaux de saturation obtenus à l'aide du modèle à une et à deux zones sont pratiquement identiques.

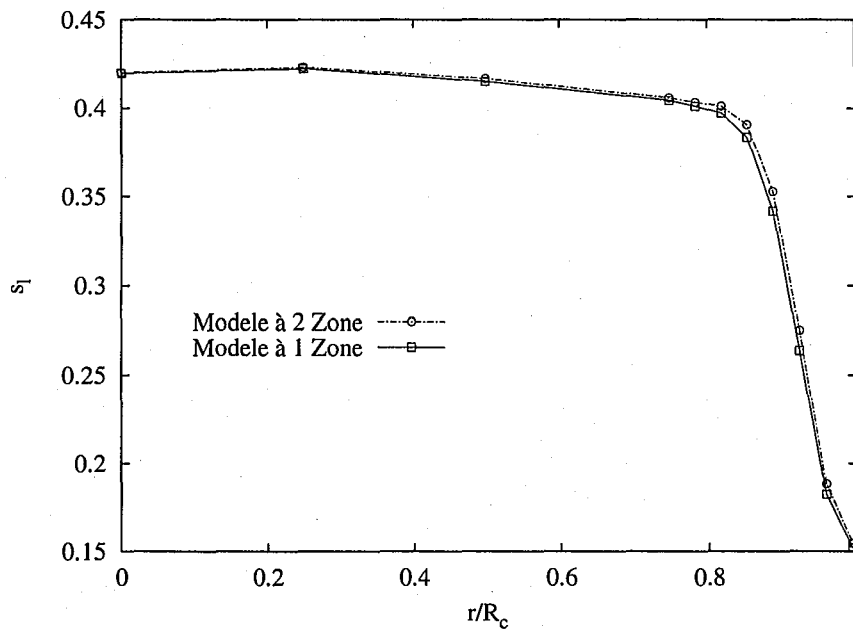


FIG. 4.14 – Comparaison des variations radiales de la saturation du liquide en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=7$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone pariétale})=0,036R_c$).

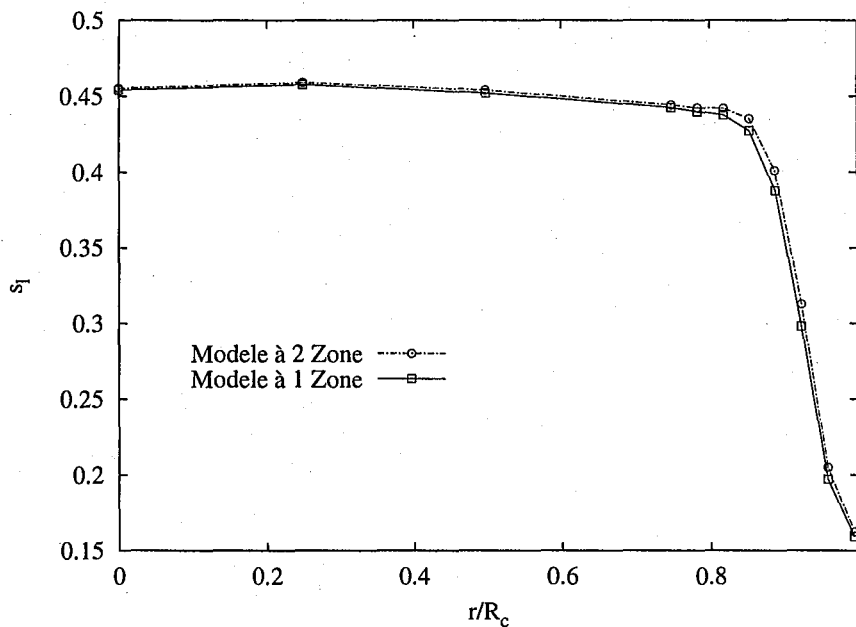


FIG. 4.15 – Comparaison des variations radiales de la saturation du liquide en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=9$ mm/s, $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone pariétale})=0,036R_c$).

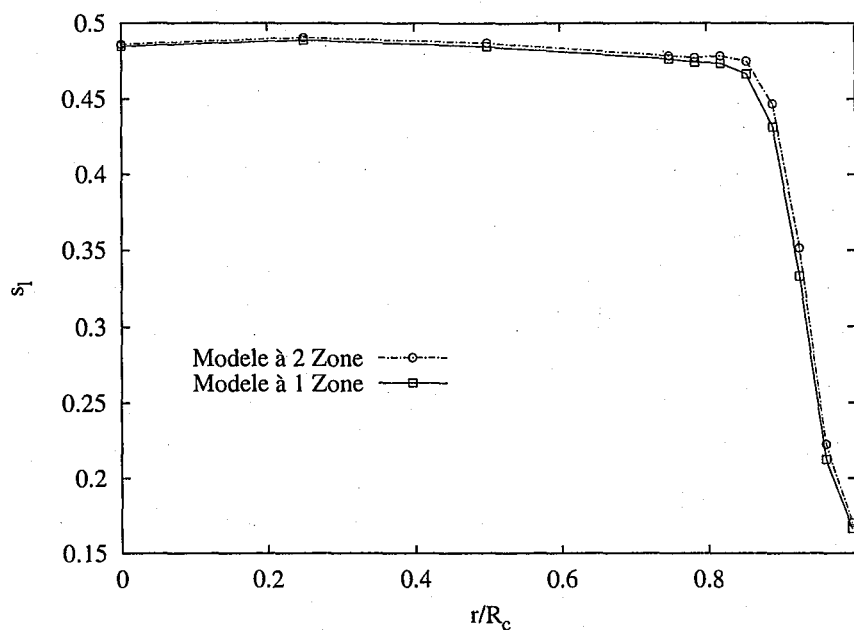


FIG. 4.16 – Comparaison des variations radiales de la saturation de liquide en utilisant les modèles à une et à deux zones ($U_l=11$ mm/s; $U_g=0,179$ m/s et $z=0,8$ m, $\Delta r(\text{zone pariétale})=0,036R_c$).

Pour les débits de fluide considérés, les résultats de simulation en termes de distribution radiale de vitesse et de saturation locale de liquide, en utilisant le modèle à une et à deux zones sont sensiblement identiques. Pour confirmer ce comportement, il faut élargir le domaine de simulation, et changer la valeur de transition entre les deux zones (dans notre cas $\epsilon_{tr} = 0,9$). Par ailleurs, il faut rechercher un autre modèle de fermeture pour la zone à forte porosité autre que le modèle d'un écoulement stratifié stable, qui est relativement simplifié.

Remarque :

Comme la surface de contact gaz-liquide est réduite au périmètre de contact, Per_{fg} et que le modèle est appliqué pour chaque cellule de calcul, alors on aura :

$$Per_{fg} = \Delta z$$

4.1.4 Applications au régime dispersé

Dans cette partie, l'hydrodynamique en régime dispersé pour une porosité uniforme est étudiée. De la même manière qu'en régime ruisselant, des modèles de fermeture adaptés sont utilisés pour décrire l'effet des forces d'interactions entre phases.

Modèles de fermeture

Dans le cas d'un régime dispersé, la phase gazeuse est supposée complètement dispersée dans la phase liquide sous forme de bulles (figure 4.17). Le contact entre la phase solide et la phase gazeuse est très limité. Par conséquent, la force d'interaction gaz-solide est négligée.

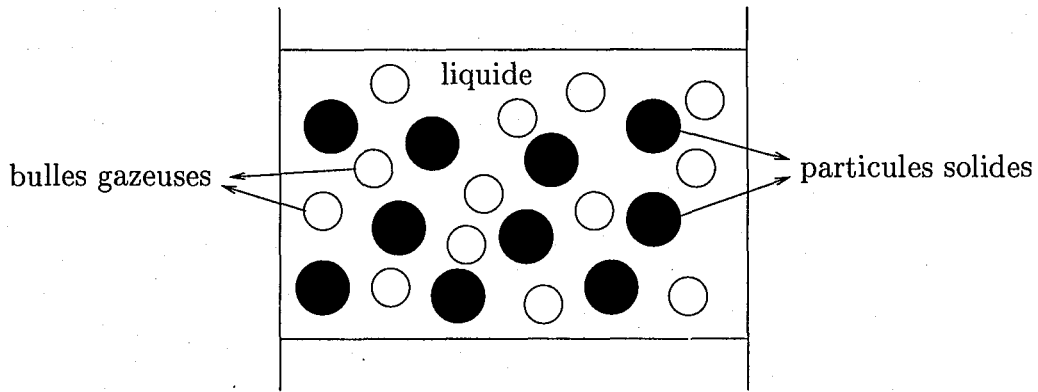


FIG. 4.17 – Configuration des trois phases en régime dispersé.

Par ailleurs, les termes d'échanges de quantité de mouvement entre phases sont exprimés de la même manière que dans le cas d'un régime ruisselant (équation 4.3). Ainsi, le modèle de perméabilité relative de Saez et Carbonell (1985) sera utilisé pour exprimer le coefficient d'échange liquide-solide.

De plus, le modèle de bulle dispersée développé par Attou et Ferschneider (1999) sera utilisé pour modéliser l'interaction gaz-liquide :

$$X_{lg} = \frac{\theta_g}{\epsilon} (A_{gl}\mu_l + B_{gl}\rho_m|U_d|), \quad (4.31)$$

où

$$\rho_m = \frac{\theta_l}{\epsilon}\rho_l + \frac{\theta_g}{\epsilon}\rho_g, \quad (4.32a)$$

$$U_d = \frac{\theta_g\theta_l}{\epsilon}(u_g - u_l), \quad (4.32b)$$

$$A_{gl} = \frac{12\epsilon^2}{\theta_g\theta_l^2 d_b^2}, \quad (4.32c)$$

$$\text{et } B_{gl} = \frac{27}{80} \frac{\theta_l}{\epsilon\theta_g^2 d_b}. \quad (4.32d)$$

Où d_b est la taille des bulles. Elle est estimée en supposant que le mécanisme de cassure des bulles est lié à la dissipation d'énergie turbulente. Le critère d'Hinze (1955) est alors utilisé pour modéliser le diamètre des bulles, d_b , à l'équilibre. Son expression est :

$$d_b = 1,15 \left(\frac{\sigma_l}{\rho_l} \right)^{3/5} e_l^{-2/5}, \quad (4.33)$$

où e_l est le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente qui s'écrit :

$$e_l = \frac{U_l}{\epsilon \rho_l} \left(-\frac{dp}{dz} \pm \rho_l g_z \right). \quad (4.34)$$

Les modèles de fermeture décrits ci-dessus sont implémentés dans le code de calcul et des simulations ont été menées pour différents débits liquides et gazeux.

Résultats de simulation

Les résultats hydrodynamiques du calcul sont comparés à différents travaux de la littérature en termes de perte de charge et de saturation du liquide. Toutefois, peu de travaux d'écoulement dans un RCLFA en régime dispersé, sont reportés dans la littérature. La figure 4.18 présente une comparaison des pertes de charge obtenues par simulation et les quelques résultats issus de la littérature. En général, les résultats de calcul sont en bon accord avec les résultats de la littérature surtout avec ceux de Rao et al. (1983).

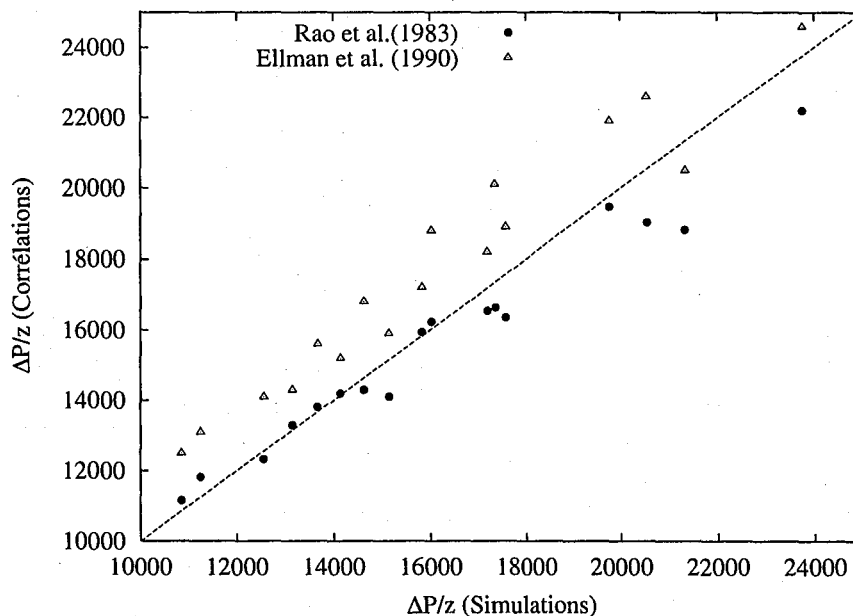


FIG. 4.18 – Comparaison des pertes de charge calculées aux corrélations de la littérature.

De la même manière, les saturations du liquide obtenues par simulation sont comparées aux résultats de la littérature sur la figure 4.19. Les résultats de calcul sont correctement

prédits par les corrélations de Rao et al. (1983) et Larachi et al. (1991). Par contre, une différence relativement importante avec la corrélation d'Ellman et al. (1990) est observée. Cet écart peut être expliqué par la généralité de la corrélation. En effet, elle est basée sur l'ensemble des résultats obtenus au LSGC pendant plus de 20 ans. Toutefois, la différence entre les corrélations utilisées et les calculs, en général, ne dépasse pas 30%.

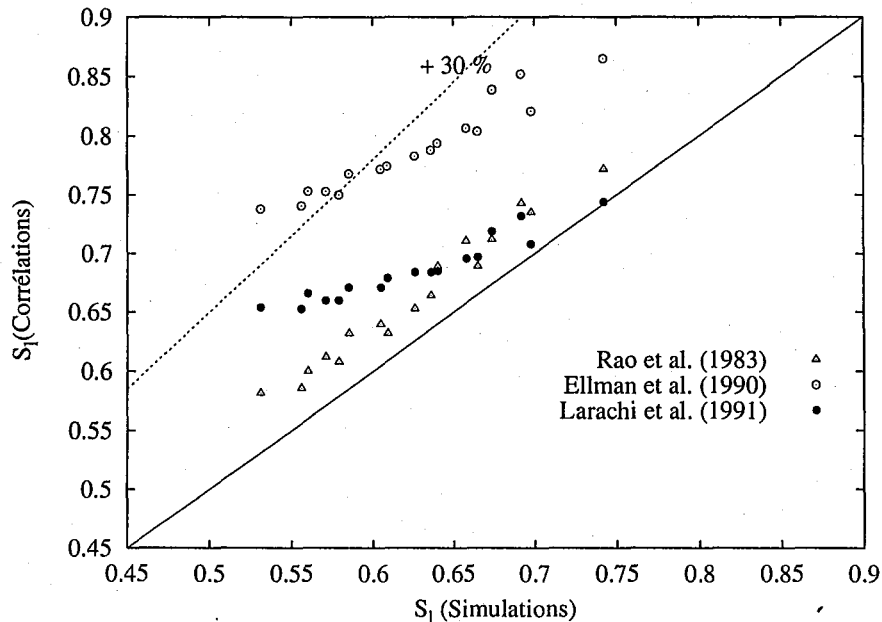


FIG. 4.19 – Comparaison des saturations du liquide calculées aux corrélations de la littérature.

4.1.5 Conclusion

L'étude de l'hydrodynamique dans un réacteur à lit fixe et à écoulement à co-courant vers le bas du gaz et du liquide, en régime ruisselant et dispersé, était l'objet de cette partie.

Dans le cas du régime ruisselant, une comparaison entre les différents modèles d'interactions fluides-solide et gaz-liquide utilisés a été menée. On note que même si les forces d'interaction gaz-liquide sont relativement faibles dans ce régime d'écoulement, les résultats expérimentaux sont sensiblement mieux estimés dans le cas où on les prend en compte. En implémentant un profil de porosité de type exponentiel, on a remarqué que la saturation du liquide décroît avec l'augmentation de la porosité jusqu'à atteindre des valeurs assez faibles au voisinage de la paroi. Cela peut s'expliquer par le fait que le gaz occupe l'espace adjacent à la paroi à cause de sa viscosité et de la force de frottement avec la paroi, qui est beaucoup moins importante que celle du liquide. De plus, en étudiant la distribution radiale du liquide, on a remarqué que plus on augmente les débits d'alimentation de la phase liquide ou de la phase gazeuse, plus la zone adjacente à la paroi s'enrichit en liquide. Cette tendance a été remarquée dans les travaux expérimentaux de Marcandelli (1999). Toutefois, les proportions de liquide obtenues par simulation dans les

différentes zones diffèrent de beaucoup des mesures expérimentales. Cela peut s'expliquer par le profil de porosité considéré qui ne traduit pas parfaitement la distribution de porosité dans le lit. Il serait plus judicieux d'implémenter directement des mesures de porosité le cas échéant.

Par ailleurs, Pour tenir compte de la singularité au voisinage de la paroi (forte porosité), le modèle à deux zones a été étudié. Dans ce cas, la simulation concernera un écoulement gaz/liquide au voisinage de la paroi, et un écoulement gaz/liquide/solide dans le reste du lit. Les résultats sont sensiblement identiques à ceux obtenus en ne considérant qu'une zone unique. Pour confirmer ce comportement, il faudra observer l'effet de la valeur de transition (dans notre cas $\epsilon_{tr}=0,9$) sur les résultats. De plus, il faut rechercher un autre modèle de fermeture pour la zone à forte porosité, autre que celui d'un écoulement stratifié stable, qui est relativement simplifié.

L'étude hydrodynamique en régime dispersé a été menée en négligeant les forces d'interaction gaz-solide (bulles complètement dispersées dans le liquide) et en modélisant l'interaction gaz-liquide par le modèle de bulles dispersés développé par Attou et Ferschneider (1999). Les résultats de simulation en termes de pertes de charge et de saturation globale montrent un bon accord avec les résultats de la littérature.

4.2 Transfert de matière

Dans cette partie, une étude du transfert de matière liquide/paroi dans un RCLFA en écoulement ruisselant et dispersé a été menée. Le dispositif expérimental et le principe de mesure (méthode électrochimique) sont identiques à ceux utilisés dans le cas du transfert de matière dans un lit fixe monophasique décrits dans le chapitre 3. Les valeurs du coefficient de transfert de matière liquide/paroi sont estimées pour le cas de porosité uniforme et dans le cas de profil variable de Vortmeyer et Schuster (1983).

4.2.1 Formulation du problème

Comme pour le cas monophasique, les profils de concentration dans le réacteur, ont été déterminés. Ces profils permettent de calculer le coefficient de transfert de matière liquide/paroi. Pour ce faire, le problème de l'hydrodynamique est formulé de la même façon que dans la première partie (paragraphe 4.2). En plus des deux équations de quantité de mouvement, l'équation de conservation d'une espèce i dans la phase liquide viendra s'ajouter au modèle. Cette équation s'écrit :

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_i u_i = \nabla (D_{il} \nabla \rho_i) \quad (4.35)$$

où ρ_i est la densité de l'espèce i (hexacyanoferrate III dans ce cas) et D_{il} est le coefficient de diffusion de l'espèce i dans la phase liquide.

Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales et aux limites des concentrations massiques de l'hexacyanoferrate III sont pratiquement les mêmes que dans le cas monophasique :

- initialement on a :

$$0 \leq r \leq R_c, 0 \leq z \leq H, t = 0 \Rightarrow \rho_i = \rho_i^0; \quad (4.36)$$

- à l'entrée de la colonne on a :

$$z = 0 \Rightarrow \rho_i = \rho_i^0, \forall t, \forall r; \quad (4.37)$$

- on considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0 \Rightarrow \frac{\partial \rho_i}{\partial r} = 0, \forall z; \quad (4.38)$$

- dans la zone réactive, la concentration est nulle à la paroi

$$z_0 \leq z \leq z_0 + L_e \Rightarrow \rho_i(r = R) = 0; \quad (4.39)$$

- à la sortie de la zone réactive le gradient axial de la concentration est nul

$$z = z_0 + L_e \Rightarrow \frac{\partial \rho_i}{\partial z} = 0, \forall r. \quad (4.40)$$

De la même manière que dans le cas monophasique, le coefficient global de transfert de matière liquide/paroi s'écrit :

$$\bar{k}_d = -\frac{D_{il}}{C_0} \int_0^{L_e} \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_{r=R_c} dZ. \quad (4.41)$$

4.2.2 Résultats et discussions

Régime ruisselant

Un exemple de profil de concentration en hexacyanoferrate III pour différentes positions axiales est présenté sur la figure 4.20, pour une porosité uniforme. On remarque que la concentration ne dépend pas seulement de la position radiale mais aussi de la position axiale.

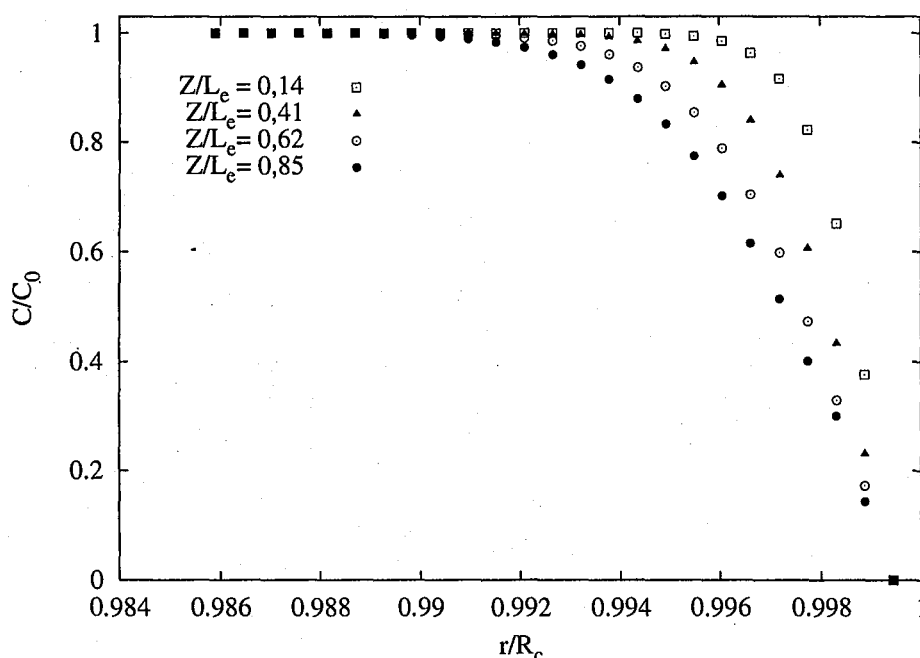


FIG. 4.20 – Profils radiaux de la concentration en hexacyanoferrate III à différentes positions axiales ($Re_l=13,3$ et $Re_g=26,8$).

La figure 4.21 présente l'évolution du coefficient de transfert de matière en fonction du débit gazeux à différents débits de liquide dans le cas d'une porosité uniforme. On remarque que le coefficient de transfert de matière est insensible aux variations du débit gazeux ; par contre il augmente avec le débit liquide. Ce résultat a été remarqué expérimentalement par Naderifar (1995).

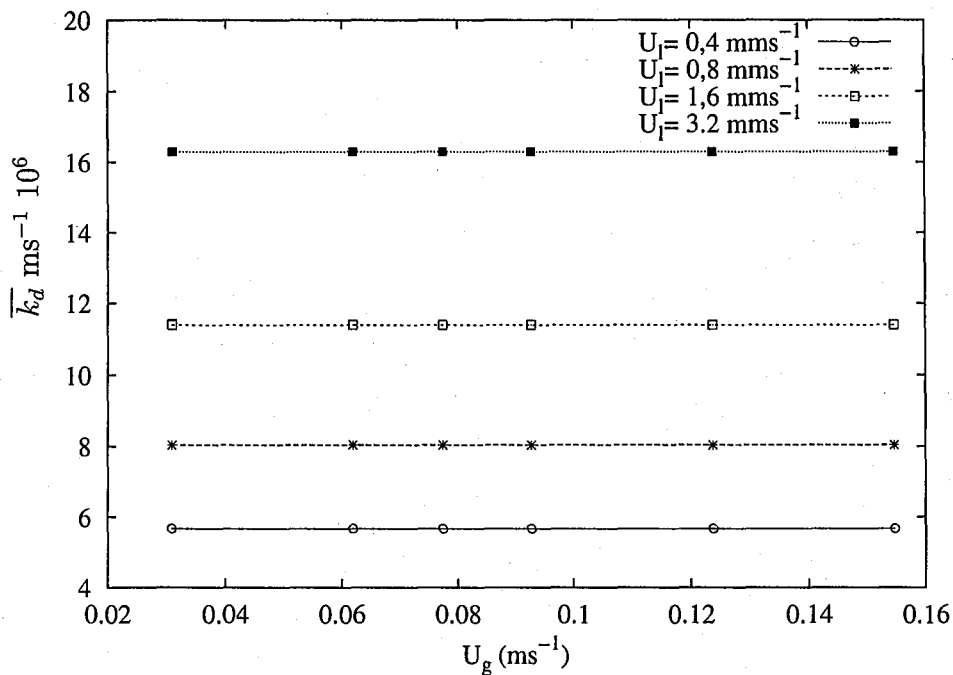


FIG. 4.21 – Variations du coefficient global de transfert de matière liquide/paroi avec le débit de gaz pour différents débits de liquide ($Sc = 1215$).

La figure 4.22 présente une comparaison des résultats du calcul obtenus pour les deux cas de porosité, aux résultats expérimentaux en régime ruisselant. Dans les deux cas, l'accord avec les résultats expérimentaux est satisfaisant. Toutefois, on peut noter que les valeurs du transfert de matière obtenues en utilisant une porosité uniforme sont supérieures à celles obtenues en supposant un profil exponentiel de porosité. Cela est dû au fait que le phénomène a lieu dans la phase liquide à la paroi du réacteur, là où la saturation et ainsi le débit du liquide sont les plus faibles (voir chapitre 4.1).

Le modèle de porosité variable a été utilisé dans le but d'améliorer l'estimation du coefficient de transfert de matière. Cependant, on constate que les résultats expérimentaux sont mieux prédits avec une porosité uniforme (Fig. 4.22). Pour expliquer ce comportement deux hypothèses sont avancées :

- le profil de porosité ne décrit pas parfaitement la variation de porosité
- les modèles d'interactions entre phases ne sont pas adaptés à la zone proche de la paroi là où la porosité est très grande pour le profil considéré (ϵ très proche de 1).

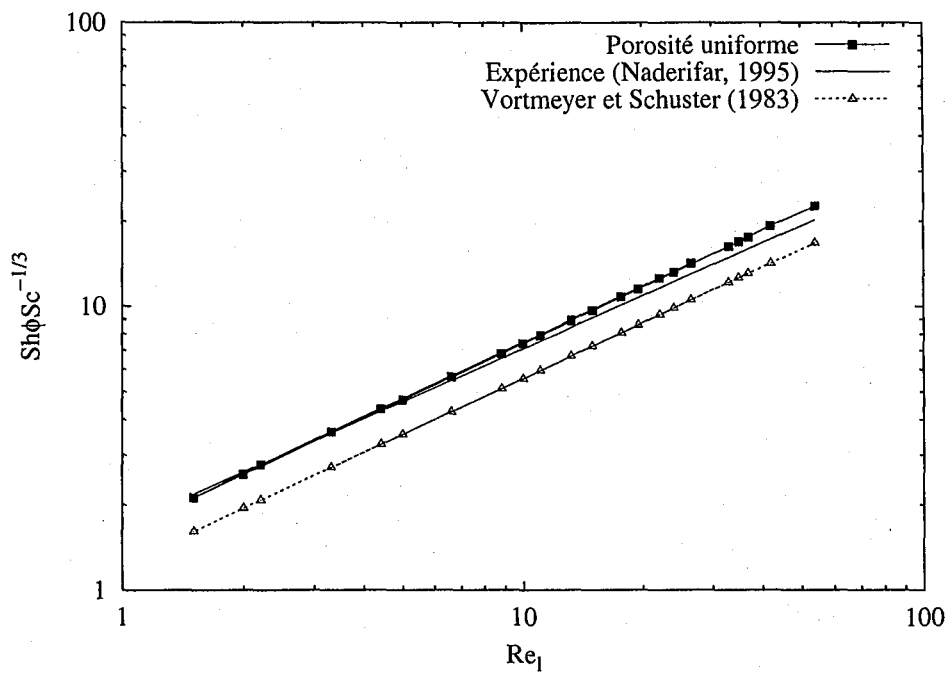


FIG. 4.22 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux mesures expérimentales en régime ruisselant.

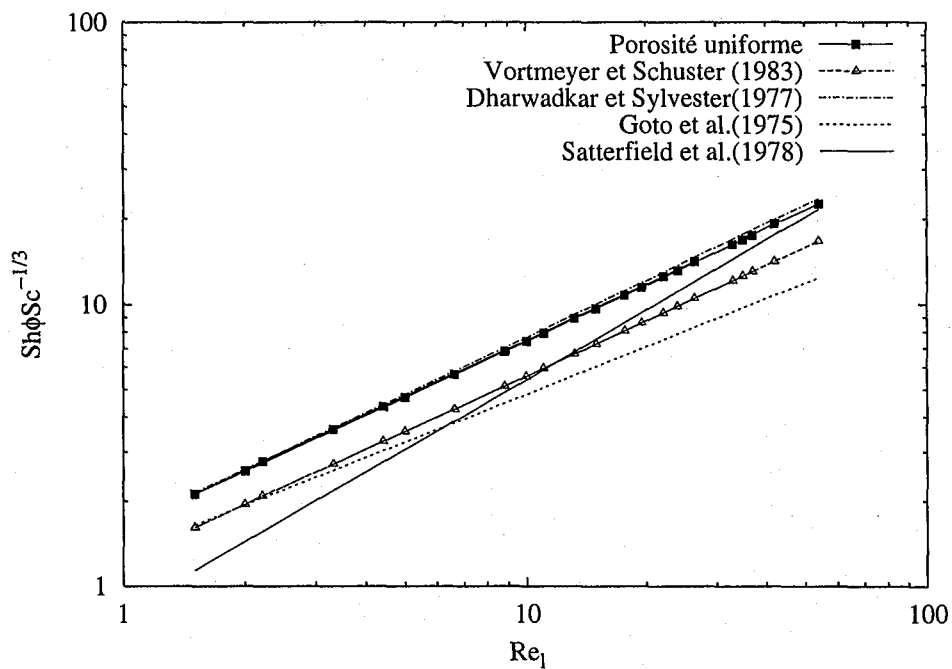


FIG. 4.23 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux corrélations de la littérature en régime ruisselant.

La comparaison des résultats du calcul pour les deux cas de porosité avec les corrélations de la littérature est représentée sur la figure 4.23. Pour une porosité constante, la corrélation de Dharwadkar et Sylvester (1977) représente très bien les résultats de simulation. En revanche, pour une porosité variable, la corrélation de Goto et al. (1975) s'approche le mieux des prédictions. Il faut noter que les corrélations utilisées (Goto et al., 1975; Dharwadkar et Sylvester, 1977; Satterfield et al., 1978) sont données pour le transfert de matière liquide/particule. Néanmoins, le transfert est presque identique au transfert de matière liquide/paroi (Latifi, 1988).

Régime dispersé

En régime dispersé la même méthodologie est utilisée pour obtenir les valeurs du transfert de matière.

La figure 4.24 compare les résultats expérimentaux (Naderifar, 1995) aux résultats de calculs pour les deux profils de porosité. Les résultats de simulation tendent à sous-estimer de manière systématique les valeurs expérimentales. Toutefois, l'accord est très satisfaisant (erreur inférieure à 20%). Comme c'est le cas en régime ruisselant, on peut noter que les valeurs du transfert de matière liquide/paroi sont mieux estimées en supposant que la porosité est uniforme.

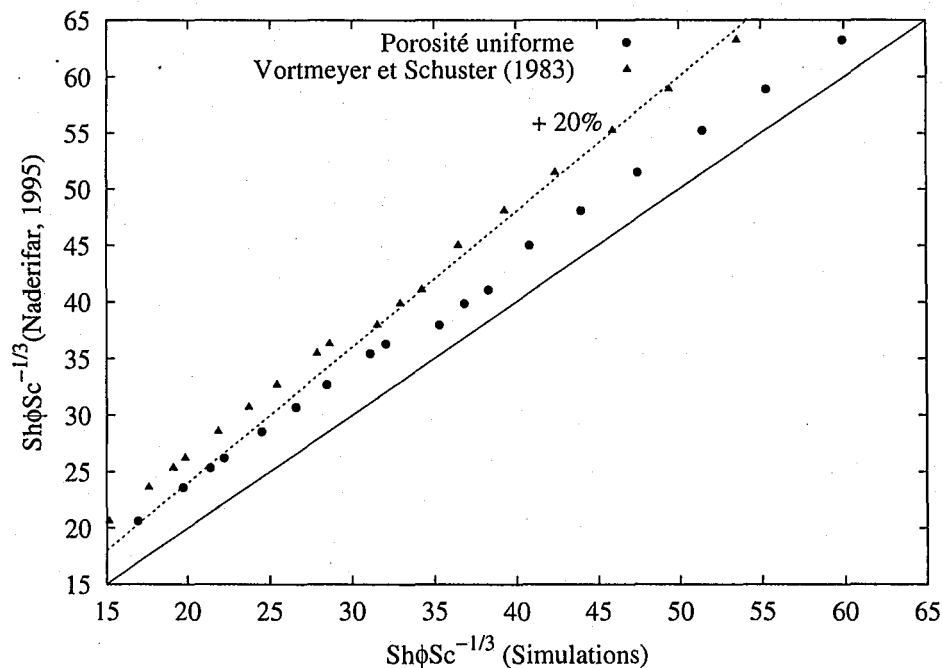


FIG. 4.24 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux mesures expérimentales en régime dispersé.

Par ailleurs, les résultats du calcul sont comparés aux corrélations de la littérature dans le cas de porosité constante et pour un profil de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983). Ces comparaisons sont présentées sur les figures 4.25 et 4.26 respectivement.

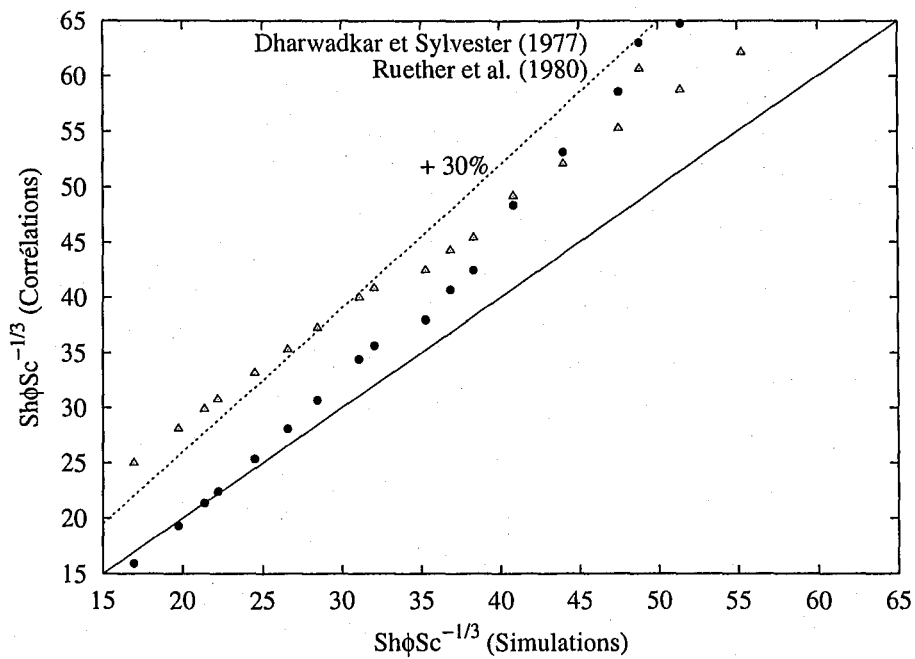


FIG. 4.25 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux corrélations de la littérature en régime dispersé à porosité constante.

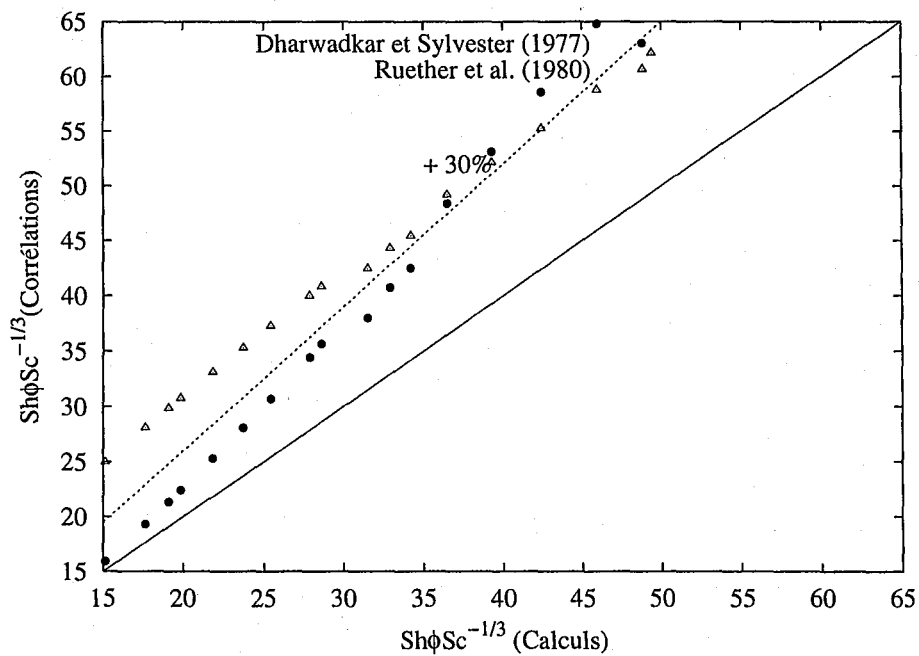


FIG. 4.26 – Comparaison des résultats de simulation du transfert de matière aux corrélations de la littérature en régime dispersé pour un profil de porosité de Vortmeyer et Schuster (1983).

On remarque un meilleur accord dans le cas où la porosité est uniforme. Par ailleurs, la corrélation de Ruether et al. (1980) s'approche le mieux des résultats de simulation. Il convient cependant de souligner que la corrélation de Dharwadkar et Sylvester (1977) a été établie à partir d'une compilation des données de la littérature, et elle est valable pour tous les régimes d'écoulement. En revanche, la corrélation de Ruether et al. (1980) a été établie en régime dispersé et pulsé.

4.2.3 Conclusion

Le but de ce paragraphe est d'estimer le coefficient de transfert de matière liquide/paroi mesuré à l'aide de la méthode électrochimique. En utilisant les modèles de fermeture hydrodynamique et en rajoutant l'équation de conservation de chaque espèce, le profil de concentration de l'espèce réactive est déterminé en régime ruisselant et dispersé dans les cas de porosité uniforme et variable. Ces profils de concentration fournissent directement le coefficient de transfert de matière.

En comparant aux mesures expérimentales, il a été montré que les résultats du transfert de matière, aussi bien en régime ruisselant qu'en régime dispersé, sont mieux estimés pour une porosité uniforme. Cela peut s'expliquer par la non-validité du profil utilisé pour ce problème, mais aussi par la limitation des modèles de fermeture employés, notamment à la paroi où la porosité est très proche de un.

Pour mieux décrire le phénomène, la mesure expérimentale du profil de porosité serait appréciable et améliorerait les prédictions.

Chapitre 5

Simulation du régime pulsé induit en RCLFA

En régime pulsé naturel, la colonne est traversée alternativement par des bouchons riches en gaz et des bouchons riches en liquide. Grâce à cette particularité, l'intensité du transfert de matière et de chaleur et ainsi la performance du réacteur sont augmentées. Cependant, le régime pulsé est obtenu à des débits de liquide et de gaz relativement élevés, ce qui va occasionner de fortes pertes de charge et un temps de contact entre phases très faible.

Au même titre que le régime ruisselant et dispersé, nous cherchions à modéliser et simuler le régime pulsé naturel. Le problème est qu'à ce jour, nous ne disposons pas encore de la connaissance physique des phénomènes qui nous permettra de le faire. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi de simuler le régime pulsé induit à la place.

Le régime pulsé induit possède l'avantage d'avoir les mêmes caractéristiques qu'un régime pulsé naturel tout en opérant à des débits de gaz et de liquide relativement faible. En effet, des alternances de bouchons riches et pauvres en liquide sont créées artificiellement, en imposant une alimentation périodique du liquide ou du gaz ou des deux fluides simultanément.

Dans ce chapitre, l'écoulement d'un RCFLA en régime pulsé induit est simulé. Les résultats obtenus sont comparés à ceux du régime stationnaire. Par ailleurs, l'effet de l'alimentation périodique sur les paramètres de transfert et plus particulièrement le transfert de matière liquide/paroi est étudié.

5.1 Définitions et bibliographie

L'opération périodique dans un RCLFA n'est pas seulement réalisée en faisant varier les débits des phases fluides, mais aussi en imposant des variations cycliques pour tout paramètre d'entrée, à savoir la composition de la phase liquide ou gazeuse, ainsi que la température d'entrée de ces phases. Dans cette étude on s'intéressera uniquement au régime pulsé induit engendré par des variations périodiques de débits d'alimentation du gaz ou du liquide.

Généralement, les débits d'alimentation sont variés de manière périodique sous forme de créneaux. De plus, dans la plupart des études qui seront exposées par la suite, le débit d'entrée liquide est utilisé pour engendrer le régime pulsé induit. La figure 5.1 présente le schéma d'une alimentation périodique. On peut ainsi noter qu'un cycle d'alimentation est caractérisé par quatre paramètres :

- la vitesse de base, U_{lb} ;
- la durée d'alimentation de base, t_b ;
- la vitesse pulsée, U_{lp} ;
- la durée d'alimentation pulsée, t_p .

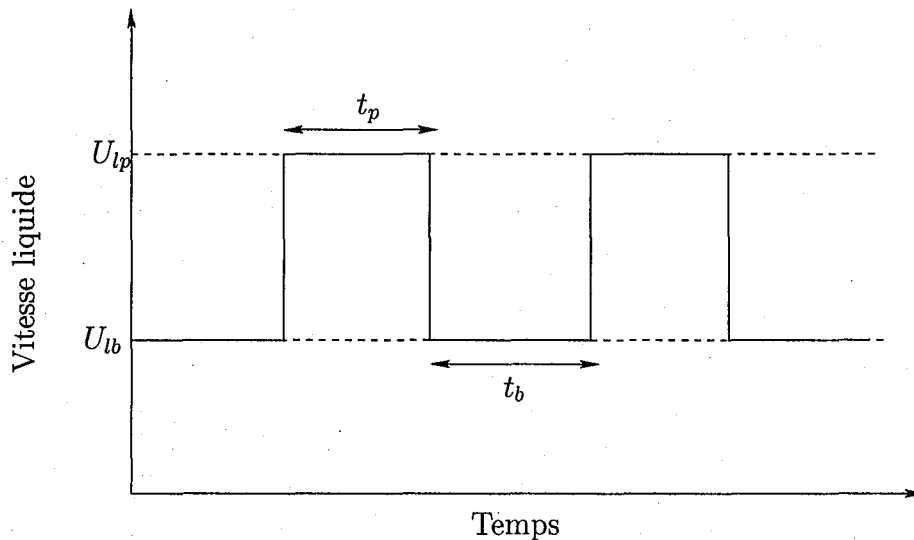


FIG. 5.1 - Variations périodiques de la vitesse d'alimentation du liquide en régime pulsé induit

D'autres grandeurs sont définies à partir des paramètres principaux. On peut notamment citer :

- la fréquence des pulsations, f :

$$f = \frac{1}{t_p + t_b} \quad (5.1)$$

- l'amplitude des pulsations, Am , qui est la différence entre la vitesse pulsée et la vitesse de base :

$$Am = U_{lp} - U_{lb} \quad (5.2)$$

De plus, la vitesse moyenne du liquide est exprimée par la moyenne temporelle suivante :

$$U_{lmoy} = \frac{U_{lp}t_p + U_{lb}t_b}{t_p + t_b} \quad (5.3)$$

Il est à noter que la comparaison entre les performances du réacteur en régime pulsé induit (opération périodique) et en régime stationnaire est réalisée à vitesses moyennes égales.

5.1.1 Influence de l'opération périodique sur les performances des RCLFA

Le but de l'utilisation des opérations périodiques dans les RCLFA est essentiellement d'améliorer leurs performances. Plusieurs études mettant en oeuvre une réaction chimique dans un RCLFA en opérations périodiques sont reportées dans la littérature. On peut notamment citer :

- Haure et al. (1989) ont étudié l'influence de l'opération périodique sur la production d'acide sulfurique à partir du dioxyde de soufre. Ils ont remarqué que l'interruption totale de l'alimentation en liquide de base ($U_{lb} = 0$), conduit à une augmentation de 65% de la production en H_2SO_4 ;
- Lange et al. (1994) ont fait varier la concentration en entrée du réactif liquide pour une réaction d'hydrogénation du cyclohexène et de l'alpha-méthyl-styrène (AMS), et ont obtenu une meilleure conversion par rapport à l'opération stationnaire ;
- En variant la pression opératoire, les débits et la concentration de l'alpha-méthyl-styrène (AMS) dans une réaction d'hydrogénation de l'AMS, Khadilkar et al. (1999) ont observé une amélioration de la conversion lorsque la réaction est limitée par la phase gazeuse ;
- La même réaction a été utilisée par Turco et al. (2001) avec des débits liquides relativement plus importants (limite du régime ruisselant-pulsé). Ils ont observé une augmentation de la conversion de 50% par rapport à l'opération stationnaire, en variant la vitesse du liquide. Par contre, ils ont observé une baisse de 15% en variant le débit gazeux.

D'autres études de réactions chimiques dans les RCLFA en opération périodique ont été recensées par Silveston et Hanika (2002) et Borremans (2003). Il faut noter que la majorité de ces études ont été menées pour de faibles débits de gaz et de liquide (régime ruisselant) et un mode de fonctionnement lent (valeurs de t_p et t_b relativement grandes).

5.1.2 Revue bibliographique sur les études hydrodynamiques des RCLFA en régime pulsé induit

Dans cette partie, nous allons nous intéresser spécifiquement aux études hydrodynamiques en régime pulsé induit dans un RCLFA. Tsochatzidis et al. (1997) et Boelhouwer et al. (1999, 2001b, 2002b) ont été les premiers à s'intéresser à l'hydrodynamique des RCLFA en régime pulsé induit. En utilisant des cellules de conductivité annulaire, montées à même la paroi et disposées tout au long de la colonne, ils ont effectué des mesures de saturation liquide locale (moyennées sur la section du réacteur). Ils ont ainsi mis en évidence des caractéristiques hydrodynamiques propres à ce régime d'écoulement, et étudié leur évolution dans le réacteur.

Propagation des ondes

L'alimentation périodique en crêneaux produit une alternance de zones riche et pauvre en liquide qui se déplacent le long du réacteur. Ces ondes sont caractérisées par une zone

de forte rétention liquide marquée par un front raide au début de l'onde et une diminution graduelle lors du passage à la zone de rétention faible en liquide. Boelhouwer et al. (2001b) ont remarqué que les zones riches en liquide ont le même comportement que les ondes de choc (figure 5.2).

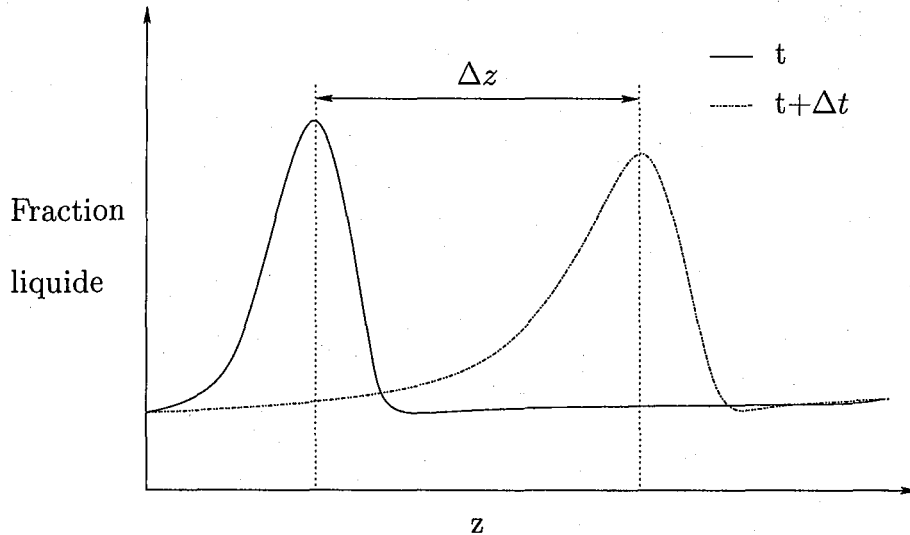


FIG. 5.2 – Vitesse de propagation de l'onde liquide ($V_w = \frac{\Delta z}{\Delta t}$)

L'onde de choc se propage dans le réacteur avec une vitesse V_w égale à $\frac{\Delta z}{\Delta t}$ (Fig. 5.2). En utilisant des considérations de continuité en régime stationnaire (Wallis, 1969), Boelhouwer et al. (2001b) ont abouti à une expression de vitesse de propagation de l'onde pour le cas d'un RCLFA en régime pulsé induit, fournie par :

$$V_w = \frac{U_{lp} - U_{lb}}{\epsilon (s_{lp} - s_{lb})} \quad (5.4)$$

De plus, des mesures expérimentales de Boelhouwer et al. (2001b) confirment la validité de cette expression.

Atténuation des ondes

En traversant la colonne, l'amplitude de l'onde a tendance à s'atténuer. Plus elle avance dans le réacteur, plus son amplitude diminue. On peut donc supposer que la zone à forte rétention perd du liquide, en traversant la colonne. Ce phénomène, appelé "atténuation des ondes", a été observé et quantifié par Boelhouwer et al. (2001b, 2002b). Ils ont notamment remarqué que le signal de l'onde de choc s'atténue aux fur et à mesure que l'onde descendait dans le réacteur. De plus, ils ont constaté que l'atténuation est d'autant plus importante que l'amplitude du créneau d'alimentation ($U_{lp} - U_{lb}$) est grande.

Modes de fonctionnement

Selon le rapport entre la longueur de l'onde de choc et la hauteur du lit, il existe deux modes de fonctionnement (figure 5.3). Le mode lent est observé lorsque les longueurs des zones riches et pauvres en liquide sont supérieures à la hauteur du réacteur. Autrement dit, les durées de l'alimentation pulsée, t_p , et de base, t_b , sont relativement lentes (généralement supérieurs au temps de passage du liquide).

Par contre, le mode rapide est obtenu lorsque les longueurs des zones de rétention forte et faible en liquide sont inférieures à la hauteur du lit. Les durées de l'alimentation pulsée et de base sont ainsi relativement courtes. De plus, plusieurs zones riches et pauvres en liquide qui se déplacent le long du réacteur sont alors observées dans la colonne.

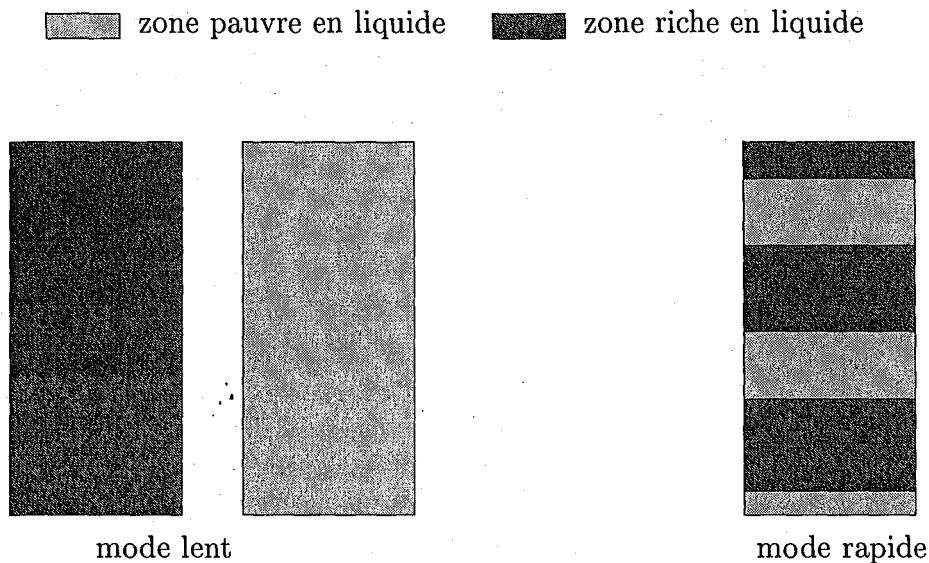


FIG. 5.3 – Modes de fonctionnement du régime pulsé induit.

Extension du domaine au régime pulsé

Boelhouwer et al. (1999, 2002b) ont étudié la stabilité des pulsations, au sens du régime pulsé naturel, créées dans les ondes de choc pour des débits liquides pulsés, U_{lp} , correspondant à un régime pulsé naturel. Ainsi, le régime pulsé naturel sera observé uniquement dans les zones à forte rétention liquide. D'autre part, la transition entre le régime ruisselant et pulsé est obtenue en régime pulsé induit à des débits de liquide plus faibles par rapport au régime pulsé naturel (Boelhouwer et al., 1999). De plus, Boelhouwer et al. (2002b) ont remarqué qu'en mode lent, de nombreuses pulsations se forment dans l'onde de choc puisque la vitesse des pulsations (au sens régime pulsé naturel) est supérieure à celles des ondes de choc. Par contre, en mode rapide, où la durée de l'alimentation pulsée, t_p , est de l'ordre de quelques secondes, il n'y aura qu'une seule pulsation dans l'onde de choc. Ainsi, la fréquence de pulsation dans l'onde de choc peut être contrôlée par la fréquence du cycle d'alimentation.

Par ailleurs, Xiao et al. (2001) ont étudié les propriétés hydrodynamiques dans un régime qu'ils ont nommé pulsé "forcé" en imposant un débit d'alimentation de gaz en créneaux. Ainsi, ils ont remarqué que la distribution radiale et axiale du liquide devient plus uniforme par rapport au régime pulsé naturel. En outre, les effets des paramètres opératoires sur la rétention liquide ont été étudiés. Ils ont notamment noté que la fréquence rapporté au débit de gaz, f_g , définie par :

$$f_g = \frac{1}{t_p + t_b} \Delta G, \quad (5.5)$$

est le paramètre le plus influent sur la rétention liquide.

ΔG est la limite supérieure et inférieure du débit de l'alimentation périodique en créneaux de gaz.

Enfin, Borremans (2003) et Borremans et al. (2003) ont étudié l'effet des opérations périodiques sur le coefficient de dispersion axiale de matière, sur la distribution des phases fluides et surtout la conductivité thermique effective radiale dans un RCLFA. La conductivité thermique effective radiale a été estimée à partir de profils radiaux de température, en appliquant un flux de chaleur constant à la paroi. En comparant les conductivités thermiques obtenues à l'état stationnaire et en opération périodique, ils ont noté que les résultats sont très proches, montrant ainsi que la pulsation de l'écoulement n'apporte aucune amélioration substantielle du transfert de chaleur.

En utilisant la formulation statistique moyennée, l'hydrodynamique et le transfert de matière liquide/paroi dans un RCLFA en régime pulsé induit sont simulés. Pour caractériser les performances du réacteur en régime pulsé induit, les résultats du transfert de matière liquide/paroi en régime ruisselant (opération stationnaire) et en régime pulsé induit (opération périodique) seront comparés.

5.2 Simulation de l'hydrodynamique en régime pulsé induit

Dans cette partie, la simulation de l'hydrodynamique est étudiée dans un RCLFA en utilisant la formulation de Kashiwa et Rauenzahn (1994). Le dispositif expérimental choisi pour la simulation est celui de Borremans (2003) qui a étudié la maldistribution et le transfert de chaleur en régime pulsé induit. Le réacteur est de 10 cm de diamètre avec une hauteur de lit de 3,1 m. Le garnissage est composé de billes de verre de 3 mm de diamètre et avec une porosité moyenne de 0,404.

Les phases liquide et gazeuse considérées pour cette étude sont respectivement l'eau et l'air. Le transfert de chaleur n'est pas pris en compte et la température dans la colonne est considérée constante et égale à 30°C.

Le modèle développé est fondé sur les hypothèses simplificatrices suivantes :

- pas de réaction chimique : les termes sources de masse et de quantité de mouvement dus à la conversion des phases sont nuls ;
- contraintes de Reynolds multiphasiques négligées ($\langle \alpha_k \rho_0 u'_k u'_k \rangle = 0$) ;
- écoulement en équilibre thermodynamique ($\nabla \theta_k (p_k^0 - p) = 0$).

Dans ces conditions, les équations de continuité et de quantité de mouvement s'écrivent respectivement :

$$\frac{\partial \rho_k}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_k u_k = 0 \quad (5.6)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_k u_k + \nabla \rho_k u_k u_k = -\theta \nabla p + \rho_k g + \nabla \cdot \langle \alpha_k \tau_0 \rangle + \langle [(p_0 - p)I - \tau_0] \cdot \nabla \alpha_k \rangle \quad (5.7)$$

5.2.1 Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales et aux limites considérées sont les mêmes que celles en régime ruisselant, à l'exception du débit d'alimentation liquide qui est périodique.

- Initialement, la saturation du liquide est égale à 0,15, et le liquide et le gaz s'écoulent respectivement avec une vitesse axiale u_l^i et u_g^i :

$$t = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad 0 \leq z \leq H \Rightarrow u_{zl} = u_l^i, \quad u_{zg} = u_g^i \quad (5.8a)$$

$$\text{et} \quad s_l^i = 0,15. \quad (5.8b)$$

- Les conditions d'adhérence à la paroi sont imposées :

$$r = R_c, \quad \forall t, \quad \forall z \Rightarrow u_l = u_g = 0, \quad (5.9)$$

- On considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0, \quad \forall t, \quad \forall z \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial u_k}{\partial r} = 0, \quad (5.10)$$

- À la sortie du réacteur, on considère que tous les gradients axiaux sont nuls :

$$z = H, \quad \forall r \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{\partial u_k}{\partial z} = 0 \quad (5.11)$$

- Enfin, à l'entrée, on impose pour le gaz des vitesses axiales uniformes, tandis que l'alimentation du liquide est périodique suivant un créneau :

$$z = 0, \quad \forall r \quad \text{pour le gaz on a} \quad u_{gz} = u_g^e \quad (5.12)$$

Pour le liquide on aura :

$$NT_e < t < NT_e + t_b \Rightarrow U_l = U_{lp} \quad (5.13a)$$

$$NT_e + t_b < t \leq (N+1)T_e \Rightarrow U_l = U_{lb}, \quad (5.13b)$$

où T_e est la période d'alimentation ($T_e = t_b + t_p$) et N un entier qui représente le nombre de séquences d'alimentation ($N = 0, 1, 2, \dots$).

Puisque toutes les vitesses étudiées, notamment les vitesses pulsées, U_{lp} , sont situées dans le domaine du régime ruisselant (opération stationnaire), les modèles de fermeture en régime stationnaire ruisselant sont utilisés dans cette étude. Ainsi, les interactions fluides-solide seront prises en compte à l'aide du modèle de perméabilités relatives de Saez et Carbonell (1985) (équation 4.9) et les forces d'interactions gaz-liquide par le modèle des deux fluides d'Attou et al. (1999) (Eq. 4.13).

5.2.2 Résultats de simulation

Comme pour les régimes ruisselant et dispersé, les équations du modèle et les conditions initiales et aux limites associées sont implémentées et résolues à l'aide du code CFDLib.

Différentes simulations ont été effectuées pour différents débits périodiques liquides et pour un débit gazeux constant, $U_g = 0,1$ m/s. La figure 5.4 montre l'évolution axiale de la fraction liquide pour trois temps de simulation et pour une position radiale de $R_c/2$ ($U_{lmoy}=0,008$ ms⁻¹, $f=0,1$ Hz, $U_{lp}=0,014$ ms⁻¹, $U_{lb}=0,002$ ms⁻¹ et $t_p=t_b=5$ s). Comme le réacteur est en mode de fonctionnement rapide, on remarque bien qu'il existe plusieurs zones pauvres et riches en liquide qui se déplacent le long de la colonne.

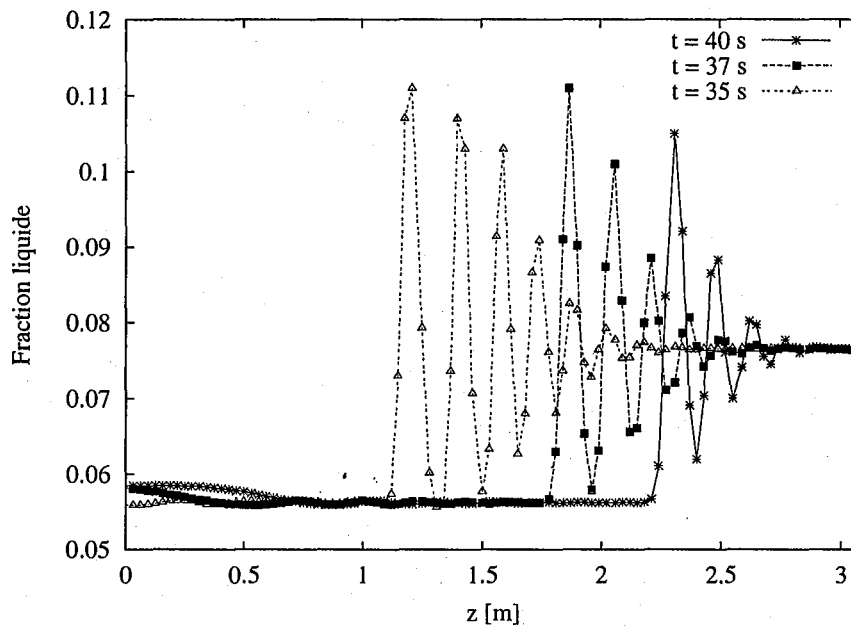


FIG. 5.4 – Variations de la rétention du liquide le long du réacteur ($U_{lmoy} = 0,008$ ms⁻¹, $U_g = 0,10$ ms⁻¹, $f = 0,1$ Hz, $U_{lp} = 0,014$ ms⁻¹, $U_{lb} = 0,002$ ms⁻¹ et $t_p = t_b = 5$ s).

Les résultats de simulation nous ont permis de relever les fractions liquides au cours du temps à différentes positions axiales. La figure 5.5 montre l'évolution de la fraction liquide au cours du temps pour trois positions axiales : juste après l'entrée, $z = 0,1$ m, au milieu de la colonne, $z = 1,5$ m et à la sortie $z = 3,1$ m. On peut ainsi remarquer qu'un même signal de fraction liquide revient de façon périodique à savoir toutes les 10 s. Par ailleurs, on peut remarquer que plus les pulsations avancent le long de la colonne, plus la durée de la zone à forte rétention ainsi que son amplitude a tendance à diminuer. Par contre, une augmentation de la durée de la traînée (allongement de l'arrière de l'onde) est remarquée. Ceci laisse supposer que la zone à forte rétention perd du liquide en traversant la colonne. En effet, une partie du liquide passe de la zone à forte rétention vers la zone à faible rétention à cause du phénomène de dispersion axiale.

La vitesse de propagation, V_w , est l'une des caractéristiques importantes aussi bien en régime pulsé naturelle qu'en régime pulsé induit. Comme les résultats de simulations fournissent les profils axiaux des fractions liquides pour un temps donné, la vitesse de propagation de l'onde liquide ($V_w = \frac{\Delta z}{\Delta t}$) peut être estimée. Ainsi, une relation entre la vitesse de propagation des pulsations et la vitesse moyenne liquide a été déterminé pour une fréquence de pulsation de 0,05 Hz, une vitesse de base liquide, $U_{lb} = 2$ mm/s, des vitesses pulsées, U_{lp} , variant de 4 à 24 mm/s et une vitesse de gaz de 0,1 m/s (figure 5.6). La vitesse de propagation varie linéairement avec la vitesse moyenne de liquide suivant l'équation ci-après :

$$V_{lw} = 7,012U_{lmoy} + 0,089 \quad (5.14)$$

On peut remarquer par ailleurs que la vitesse de propagation est largement supérieure à la vitesse moyenne du liquide. Pour expliquer ce comportement, les mêmes interprétations développées dans le paragraphe 4.1, concernant le front de propagation liquide, sont avancées.

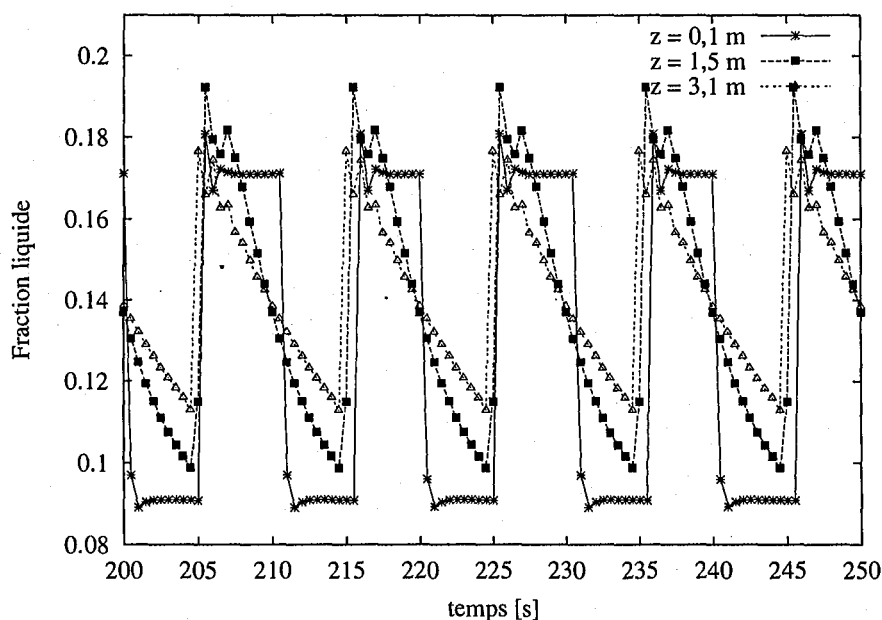


FIG. 5.5 – Évolution de la fraction du liquide au cours du temps à différentes positions axiales du réacteur ($U_{lmoy} = 0,008$ ms⁻¹, $U_g = 0,10$ ms⁻¹, $f = 0,1$ Hz, $U_{lp} = 0,014$ ms⁻¹, $U_{lb} = 0,002$ ms⁻¹ et $t_p = t_b = 5$ s).

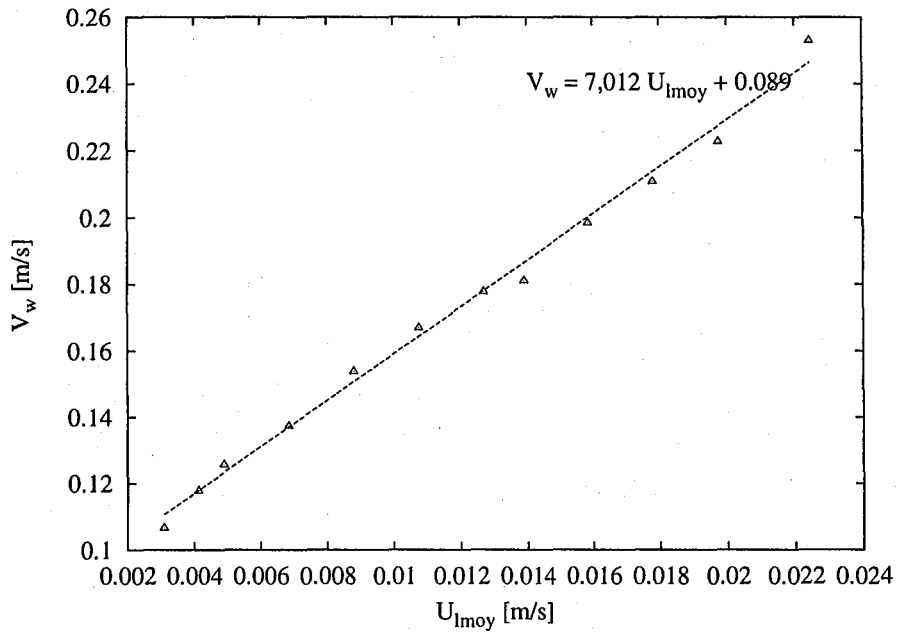


FIG. 5.6 – Vitesse de propagation en fonction de la vitesse moyenne du liquide ($t_p = t_b = 10$ s, $U_g = 0,10$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s et $U_{lp} = 4-24$ mm/s)

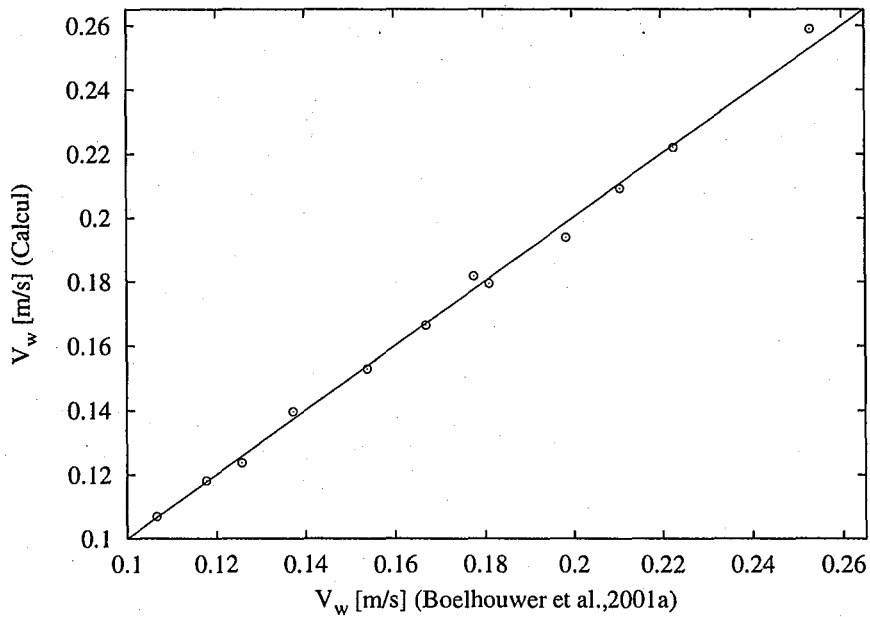


FIG. 5.7 – Comparaison des résultats de calcul de la vitesse de propagation à la corrélation de Boelhouwer et al. (2001b)

D'autre part, les résultats de vitesse de propagation obtenus par simulation sont comparés à la corrélation de Boelhouwer et al. (2001b) dans la figure 5.7 pour différentes

valeurs de débit moyen liquide. Un très bon accord entre les résultats de calcul et la corrélation est observé.

Il faut noter que les rétentions liquides relatives aux vitesses de base, s_{lb} , et pulsée, s_{lp} , en régime stationnaire, sont déterminées par simulation en régime stationnaire pour des vitesses liquides de U_{lb} et U_{lp} respectivement.

5.3 Transfert de matière

Pour la simulation du transfert de matière liquide/paroi, le même dispositif expérimental et le même principe de mesure expérimentale utilisé pour l'étude du transfert de matière en régime ruisselant et dispersé seront utilisés (Naderifar (1995)).

5.3.1 Formulation et conditions initiales et aux limites

Les équations et les conditions initiales et aux limites relatives à l'hydrodynamique sont les mêmes que celle utilisées dans la partie précédente (paragraphe 5.2). Pour le transfert de matière, ce sont les mêmes équations et conditions initiales et aux limites qu'en régime ruisselant et dispersé (paragraphe 4.2). Elles sont rappelées ici :

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_i u_i = \nabla (D_{il} \nabla \rho_i), \quad (5.15)$$

ajoutées à cela les conditions initiales et aux limites relatives aux concentrations massiques de l'hexacyanoferrate III :

– initialement on a :

$$0 \leq r \leq R_c, 0 \leq z \leq H, t = 0 \Rightarrow \rho_i = \rho_i^0; \quad (5.16)$$

– à l'entrée de la colonne on a :

$$z = 0 \Rightarrow \rho_i = \rho_i^0, \forall t, \forall r; \quad (5.17)$$

– une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0 \Rightarrow \frac{\partial \rho_i}{\partial r} = 0, \forall z; \quad (5.18)$$

– dans la zone réactive, la concentration est nulle à la paroi

$$z_0 \leq z \leq z_0 + L_e \Rightarrow \rho_i(r = R) = 0; \quad (5.19)$$

– le gradient axial de la concentration est nul à la sortie de la zone réactive

$$z = z_0 + L_e \Rightarrow \frac{\partial \rho_i}{\partial z} = 0, \forall r. \quad (5.20)$$

5.3.2 Résultats de simulations

En fonctionnement stationnaire, la concentration en hexacyanoferrate III ne dépend que de la position radiale et axiale dans le réacteur. En régime pulsé induit, la concentration en hexacyanoferrate III dépend en plus du temps (Fig. 5.8).

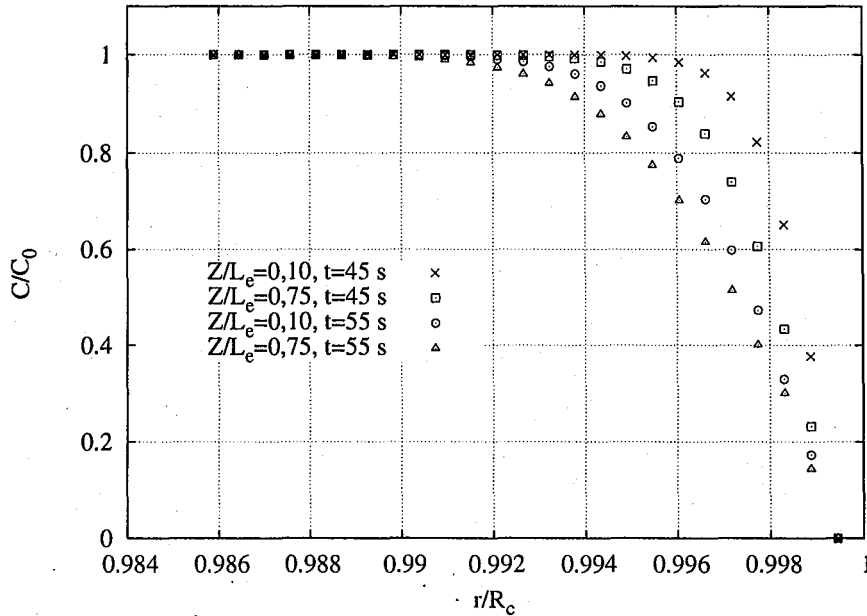


FIG. 5.8 – Profils radiaux de la concentration en hexacyanoferrate III à différentes positions axiales et différents temps de simulation ($U_{lmoy} = 6$ mm/s, $U_g = 0,10$ m/s, $U_b = 2$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s, $f = 0,05$ et $Z = L_e/2$)

Pour déterminer le coefficient de transfert de matière global liquide/paroi, le flux de matière est intégré dans un premier temps sur l'ensemble de l'électrode (suivant z) pour avoir ce qui est appelé coefficient de transfert de matière temporel, $\bar{k}_d(t)$. Il est donné par :

$$\bar{k}_d(t) = \int_0^{L_e} k_d(Z, t) dZ = -\frac{D_l}{C_0} \int_0^{L_e} \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_{r=R_c} dZ \quad (5.21)$$

La figure 5.9 présente le coefficient de transfert de matière temporel en fonction du temps à $Z = L_e/2$. On peut remarquer que la variation du coefficient de transfert de matière locale suit logiquement une évolution périodique puisqu'il est intimement lié à l'hydrodynamique.

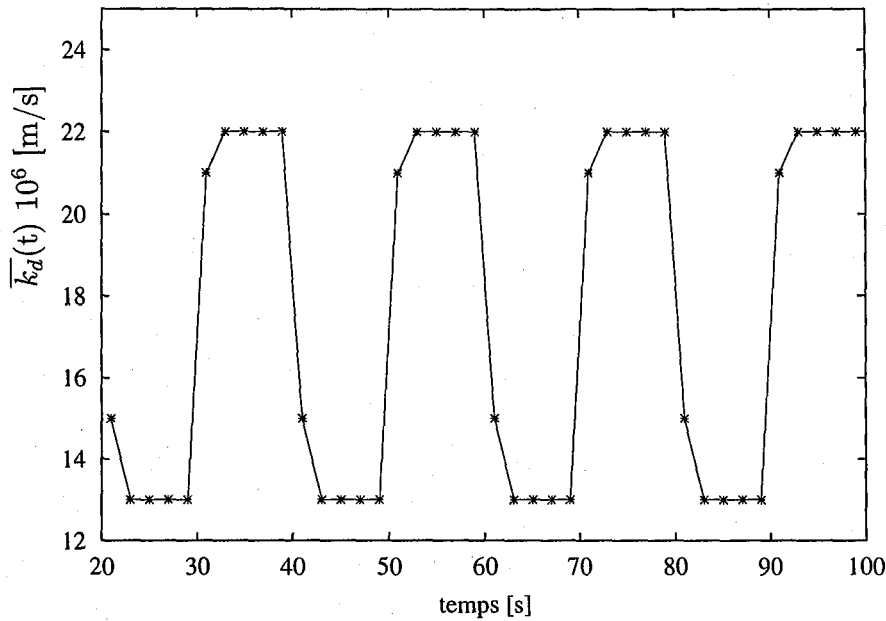


FIG. 5.9 – Coefficient de transfert de matière liquide/paroi temporel, $\overline{k_d}(t)$, en fonction du temps ($U_{l\text{moy}} = 6$ mm/s, $U_g = 0,10$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s, $f = 0,05$ et $Z = L_e/2$)

Dans un deuxième temps, le coefficient de transfert de matière temporel est intégré sur un laps de temps correspondant à la période du créneau d'alimentation, $1/f$. Le coefficient de transfert de matière global s'écrit alors :

$$\overline{\overline{k_d}} = \int_0^{1/f} \overline{k_d}(t) dt = -\frac{D_l}{C_0} \int_0^{1/f} \int_0^{L_e} \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R_c} dZ dt. \quad (5.22)$$

Plusieurs simulations ont été menées pour différents débits liquides pulsé ($U_{lp} = 3-11$ mm/s) et pour une vitesse de gaz de $U_g = 0,1$ m/s et une vitesse de base $U_{lb} = 2$ mm/s. Dans un premier temps, les résultats du transfert de matière liquide/paroi sont comparés à ceux obtenus en opérations stationnaires pour les mêmes débits moyens et conditions opératoires et présentés sur la figure 5.10. On remarque que les coefficients de transfert de matière liquide/paroi en régime pulsé induit sont sensiblement identiques voire légèrement inférieurs à ceux obtenus en régime ruisselant stationnaire.

Dans un deuxième temps, l'effet des différents paramètres du régime pulsé induit, à savoir la fréquence de pulsation et la vitesse de base, sur les résultats du transfert de matière est étudié. Les coefficients de transfert de matière global pour plusieurs valeurs de fréquence de pulsation (0,05, 0,1, 0,15 et 0,2 Hz) sont ainsi déterminés. Comme il est montré sur la figure 5.11, le coefficient de transfert de matière ne varie presque pas avec la fréquence de pulsation.

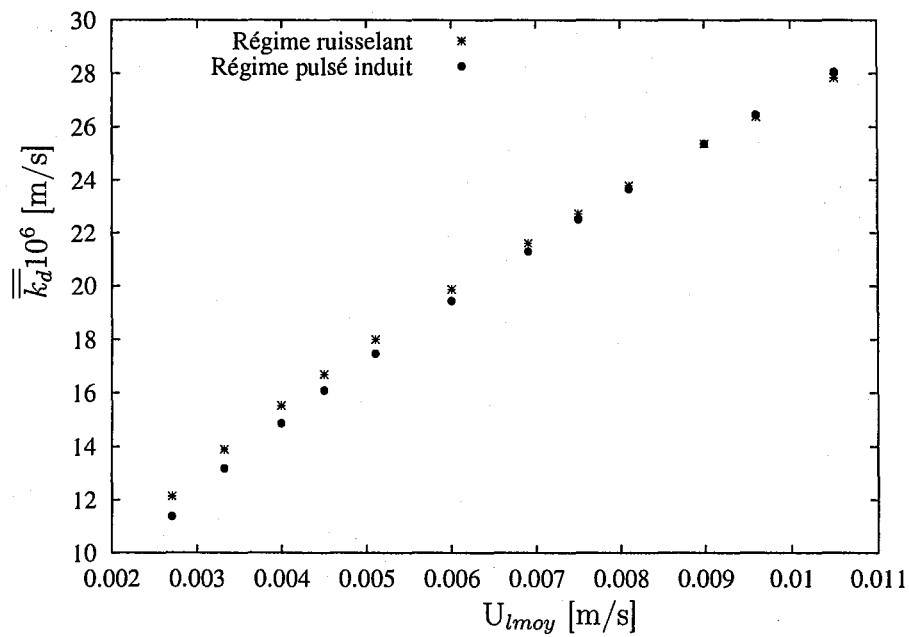


FIG. 5.10 – Comparaison des résultats du transfert de matière en régimes pulsé induit et ruisselant ($U_g = 0,1$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s, $U_{lp} = 3-13$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s et $f = 0,05$ Hz)

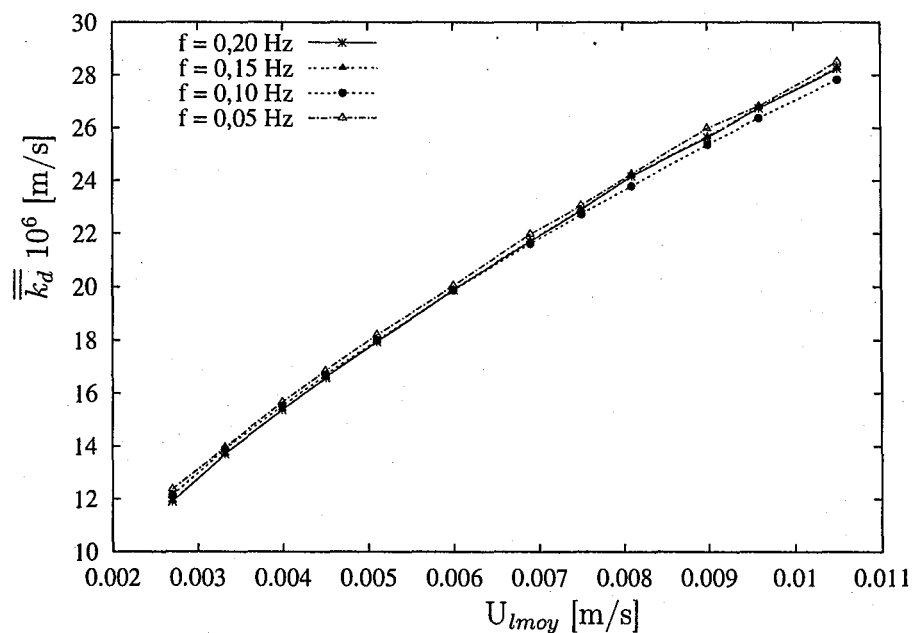


FIG. 5.11 – Évolution du coefficient global de transfert de matière avec la fréquence d'alimentation ($U_g = 0,1$ m/s, $U_{lb} = 2$ mm/s et $U_{lp} = 3-13$ mm/s)

Pour l'influence de la vitesse de base liquide, U_{lb} , la figure 5.12 montre la non-sensibilité du coefficient de transfert de matière liquide/paroi à la variation de la vitesse de base sauf

dans le cas où la vitesse de base est relativement faible ($U_{lb} = 0,5$ mm/s). Dans ce cas on observe une légère diminution du coefficient de transfert de matière.

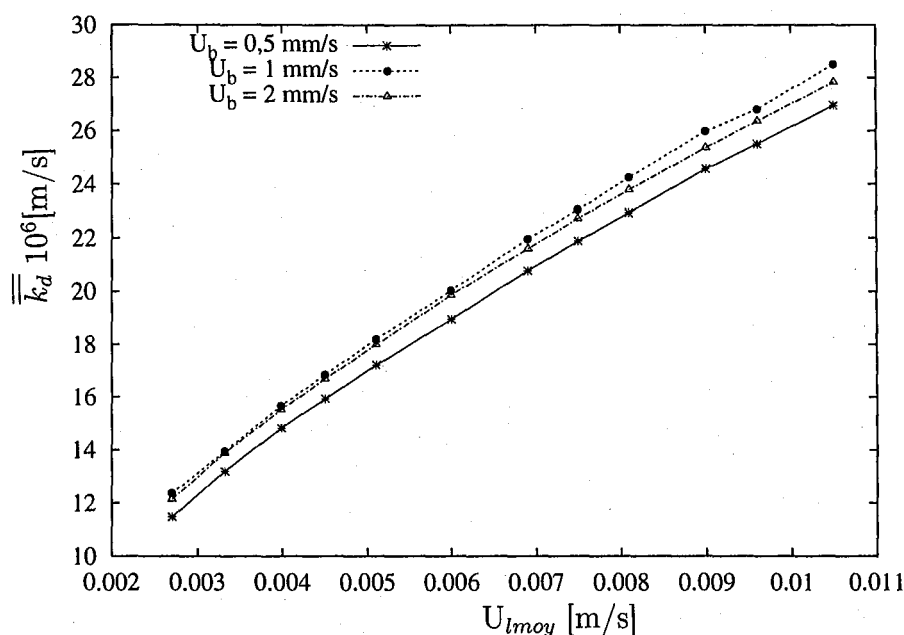


FIG. 5.12 – Variations du coefficient de transfert global de matière liquide/paroi avec la vitesse liquide de base de l'alimentation, ($U_g = 0,1$ m/s, $U_{lp} = 3-13$ mm/s, $t_p = t_b = 10$ s et $f = 0,05$ Hz)

En utilisant le régime pulsé induit, on espérait améliorer le transfert de matière, mais les résultats de simulation conduisent à des valeurs presque identiques voire inférieures dans le cas de vitesse de base faible. Pour expliquer ces résultats, l'interprétation suivante est avancée :

En opérations périodiques, le réacteur fonctionne alternativement dans les conditions hydrodynamiques correspondants aux débits de liquide de base, U_{lb} , et pulsé, U_{lp} . La valeur du coefficient global de transfert de matière liquide/paroi peut, ainsi, être estimée par la combinaison linéaire des valeurs de $\overline{k_d}$ en opérations stationnaire à U_{lb} et U_{lp} pondérées par les durées respectives, t_b et t_p :

$$\overline{k_{dapp}} = \frac{t_b \overline{k_{db}} + t_p \overline{k_{dp}}}{t_b + t_p} \quad (5.23)$$

où $\overline{k_{dapp}}$ est l'approximation du coefficient de transfert de matière en régime pulsé induit à partir des valeurs du régime stationnaire, et $\overline{k_{db}}$ et $\overline{k_{dp}}$ sont les coefficients de transfert de matière en opération stationnaire à des vitesses de liquide U_{lb} et U_{lp} respectivement.

La figure 5.13 présente une comparaison entre les valeurs du coefficient global de transfert de matière obtenu par simulation et les valeurs estimées par l'équation 5.23. On

remarque que l'équation 5.23 sous-estime systématiquement les résultats de la simulation. Néanmoins, un très bon accord est remarqué (erreur ne dépassant pas 7%).

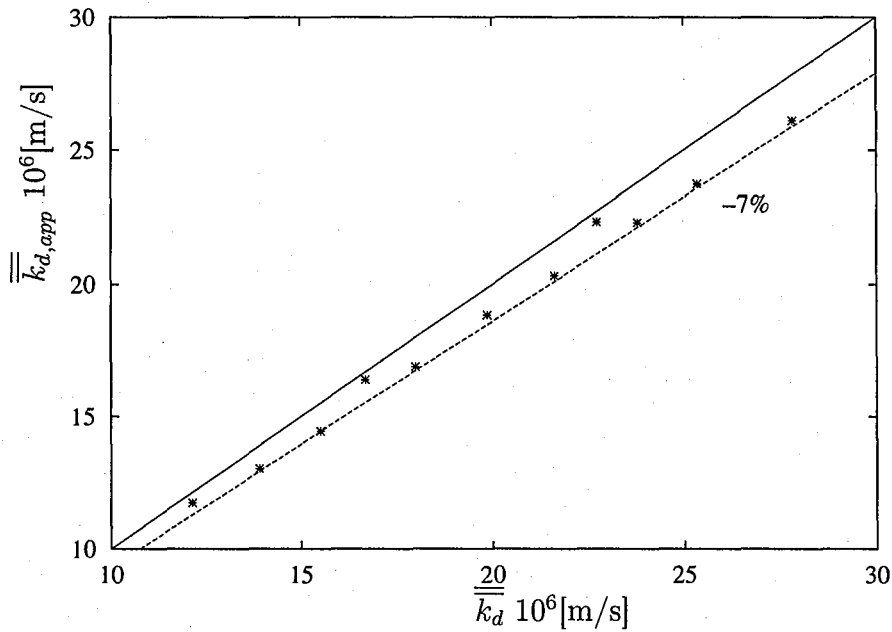


FIG. 5.13 – Comparaison entre $\overline{k_{d,app}}$ (Eq. 5.23) et les valeurs obtenues par simulation

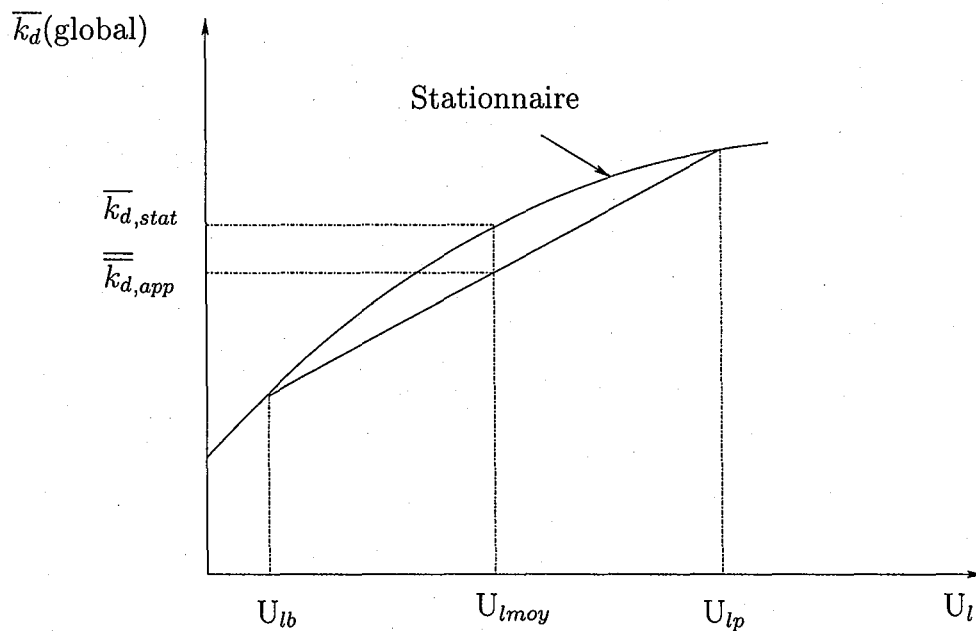


FIG. 5.14 – Schéma illustrant l'influence de l'allure de la courbe $\overline{k_d} = f(U_l)$ en opération stationnaire et en régime pulsé induit

Les valeurs estimées du coefficient de transfert de matière en régime pulsé induit $\overline{\overline{k_{d,app}}}$, et stationnaire, $\overline{k_{d,stat}}$, seront parfaitement identiques lorsque le coefficient de transfert de matière varie linéairement avec les vitesses de liquide. Pour l'intervalle de débit liquide étudié, la courbe $\overline{k_d} = f(U_l)$ est légèrement concave. C'est pour cette raison qu'on obtient des valeurs de coefficient de transfert de matière, en général, légèrement inférieures (Fig. 5.14).

Ce comportement a été remarqué, par ailleurs, par Borremans (2003) et Borremans et al. (2003) dans leur étude de conductivité thermique radiale.

5.4 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était de simuler l'hydrodynamique et le transfert de matière liquide/paroi en régime pulsé induit en mode rapide en utilisant l'approche statistique moyennée.

En hydrodynamique, les résultats de calcul ont montré que les zones à forte rétention liquide perdent du liquide en traversant la colonne ce qui est appelé communément atténuation des ondes. Par ailleurs, la vitesse de propagation des ondes a été estimée dans cette étude. La vitesse de déplacement de l'onde varie linéairement avec la vitesse moyenne de la phase liquide. Les résultats obtenus montre un bon accord avec la corrélation de Boelhouwer et al. (2001b).

Pour le transfert de matière, les résultats obtenus montrent que la pulsation de l'écoulement ne présente aucun intérêt par rapport au régime ruisselant. En effet, les coefficients de transfert de matière en régime ruisselant sont très proches de ceux obtenus en régime pulsé induit. Ceci peut être expliqué par le comportement quasi-linéaire du coefficient de transfert de matière avec le débit liquide. Ces résultats confirment, par ailleurs, ceux de Borremans (2003).

Chapitre 6

Transfert de chaleur dans un réacteur à lit fixe monophasique

Dans ce dernier chapitre, l'objectif n'est pas de simuler le transfert thermique dans un RCLFA, mais plutôt de démontrer que l'approche utilisée pour l'hydrodynamique et le transfert de matière est valable aussi pour le transfert de chaleur. Cette étude constitue une ouverture sur le transfert de chaleur dans les RCLFA et, à terme, la simulation d'un écoulement avec réaction chimique.

Plusieurs études de transfert de chaleur à l'échelle du réacteur sont reportées dans la littérature et sont présentées dans le Chapitre 1. En revanche, très peu de travaux ont été consacrés au transfert de chaleur entre les particules du lit et le fluide. Les lacunes à ce niveau sont dues au fait qu'en général les réactions menées en réacteur à lit fixe sont faiblement exothermiques. En effet, les réactions exothermiques sont préférentiellement conduites en réacteur à lit fluidisé qui ont de meilleures caractéristiques de transfert (Marcandelli, 1999).

Néanmoins, dans certains cas particuliers, il est possible que le transfert de chaleur devienne limitant dans le réacteur. En cas de mauvais mouillage des particules notamment, l'exothermicité de la réaction peut amener à des échauffements locaux. Ces derniers peuvent conduire à des diminutions du rendement ou de sélectivité de la réaction, à des désactivations locales de catalyseur, voire à la formation de points chauds. Ce problème est plus particulièrement sensible pour des liquides volatils, pour lesquels une augmentation locale de température produit une évaporation du film de liquide autour des particules et donc une détérioration de l'évacuation de la chaleur. Il semble donc nécessaire de bien caractériser le comportement thermique dans ce type de réacteur.

Ce chapitre est consacré à l'étude du transfert de chaleur dans un réacteur à lit fixe à écoulement monophasique du liquide à l'aide des deux modèles, homogène et hétérogène.

Tout d'abord, les champs de température sont déterminés en utilisant le modèle homogène ou modèle à une température. Le système polyphasique (phase solide et liquide) est ainsi remplacé par un milieu continu équivalent, caractérisé par une température unique.

Dans un second temps, le modèle hétérogène ou modèle à deux températures, est étudié. Les résultats du calcul des deux modèles de transfert de chaleur seront comparés à travers une température moyenne des deux phases dans le cas du modèle hétérogène.

6.1 Formulation du problème de transfert de chaleur

L'équation d'énergie pour une phase k est fournie par la formulation de Kashiwa et Rauenzahn (1994) avec la signification de chaque terme mis en jeu :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_k e_k}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_k e_k u_k & \quad \text{variation de l'énergie nette de la phase } k \text{ en un point ;} \quad (6.1) \\
 = & \langle \rho_0 e_0 \dot{\alpha}_k \rangle & \quad \text{énergie interne résultant de la conversion d'espèces ;} \\
 - \nabla \cdot \langle \alpha_k \rho_0 e_0 u'_k \rangle & & \quad \text{transport d'énergie dû à la turbulence ;} \\
 + (p_k \vartheta_k / c_k^2) \dot{p} & & \quad \text{travail des forces de pression ;} \\
 + \langle \alpha_k \gamma_0^{-1} (p_0 - p) \rangle & \quad \text{énergie due à la fluctuation de pression par rapport à l'équilibre ;} \\
 + \langle \alpha_k \tau_0 : \epsilon_0 \rangle / 2 & & \quad \text{dissipation visqueuse ;} \\
 - \nabla \langle \alpha_k q_0 \rangle & & \quad \text{transfert thermique dû à la conduction ;} \\
 + \langle q_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle & & \quad \text{terme d'échange d'énergie entre phases.}
 \end{aligned}$$

où q_0 , e et ϵ_0 sont respectivement le flux de chaleur, l'énergie interne et le tenseur des gradients de vitesse qui est la somme du tenseur des taux de rotation et du tenseur des taux de déformation.

Par analogie avec les gaz parfaits, γ_0^{-1} a été défini comme suit :

$$\gamma_0^{-1} = \frac{p_0}{\rho_0 c_0} \quad (6.2)$$

Comme pour l'équation de quantité de mouvement, l'équation d'énergie fait apparaître clairement les différents termes à modéliser. Il s'agit notamment, du terme d'échange de chaleur $\langle q_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle$. Il est modélisé par :

$$\langle q_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle = \theta_k \theta_l (T_k - T_l) X_r, \quad (6.3)$$

où X_r est le coefficient d'échange de chaleur entre la phase k et la phase l . La détermination de sa valeur sera abordée dans le cas de modèle hétérogène du transfert de chaleur.

les différentes hypothèses de travail sont les suivantes :

- pas de réaction chimique, ni de transfert de matière entre le liquide et le solide ;
- la porosité du lit est supposée constante et égale à la porosité moyenne ;
- le fluide est incompressible ;
- les propriétés physico-chimiques restent constantes dans le domaine de température considéré ;
- les termes relatifs à la turbulence sont négligés.

En tenant compte de ces hypothèses l'équation 6.1 devient :

$$\frac{\partial \rho_k e_k}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_k e_k u_k = (p_k \vartheta_k / c_k^2) \dot{p} + \langle \alpha_k \tau_0 : \epsilon_0 \rangle / 2 - \nabla \langle \alpha_k q_0 \rangle + \langle q_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle \quad (6.4)$$

Cette approche est utilisée pour simuler le transfert de chaleur du lit fixe monophasique pour les modèles à une et à deux températures.

Dans tous ce qui va suivre, la discrétisation est faite en deux dimensions, dans la direction radiale et la direction axiale, suivant un maillage régulier avec une cellule rectangulaire de taille $\Delta r = 0,8$ mm et $\Delta z = 8,4$ mm. Le système d'équations et les conditions aux limites associées sont résolus à l'aide du code CFDLib.

En outre, tous les résultats de simulations présentés par la suite, aussi bien pour le modèle à une température que pour le modèle à deux températures, sont établis en régime stationnaire.

6.2 Système considéré

Le réacteur utilisé est une colonne cylindrique de 42 cm de hauteur et de 3,2 cm de diamètre rempli de billes de verre de 2 mm de diamètre et avec une porosité moyenne de 0,4. L'eau constitue la phase fluide traversant le garnissage. Les caractéristiques physico-chimiques des phases solide et liquide sont présentées dans le tableau 6.1.

TAB. 6.1 – Propriétés physico-chimiques des phases

masse volumique de l'eau (ρ_l) [kg.m^{-3}]	998,5
masse volumique du verre (ρ_s) [kg.m^{-3}]	2660
capacité calorifique de l'eau (C_{pl}) [$\text{J.kg}^{-1}\text{m}^{-3}$]	4810
capacité calorifique du verre (C_{ps}) [$\text{J.kg}^{-1}\text{m}^{-3}$]	800
conductivité thermique de l'eau (λ_l) [$\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$]	0,607
conductivité thermique du verre (λ_s) [$\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$]	0,76

6.3 Modèle à une température

Ce modèle est fondé sur l'hypothèse de l'équilibre thermique local. Il consiste à remplacer les deux phases par un milieu continu équivalent, caractérisé par des propriétés physico-chimiques et une température unique. Dans ce cas, le terme d'échange de chaleur entre phases, $\langle q_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle$, n'existe pas. L'équation 6.4 devient alors :

$$\frac{\partial \rho_f e_f}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_f e_f u_f = (p \vartheta_f / c_f^2) \dot{p} + \langle \tau_0 : \epsilon_0 \rangle / 2 - \nabla \langle q_0 \rangle . \quad (6.5)$$

Les simulations sont effectuées pour deux cas de conditions aux limites à la paroi :

- la première consiste à imposer une température constante à la paroi
- dans la deuxième, la paroi est soumise à flux constant de chaleur

6.3.1 Propriétés du fluide équivalent

Les propriétés du fluide équivalent au système diphasique liquide-solide ont été définies de la manière suivante :

$$(\rho c_p)_{eq} = \epsilon(\rho c_p)_l + (1 - \epsilon)(\rho c_p)_s \quad (6.6a)$$

$$\rho_{eq} = \epsilon\rho_l + (1 - \epsilon)\rho_s \quad (6.6b)$$

$$c_{peq} = \frac{(\rho c_p)_{eq}}{\rho_{eq}} \quad (6.6c)$$

En plus de la masse volumique et de la capacité thermique de la phase équivalente, il faut aussi estimer sa conductivité thermique équivalente, λ_{eq} . Plusieurs auteurs se sont intéressés à l'estimation λ_{eq} en lit fixe monophasique à travers des corrélations. On peut citer Kunii et Smith (1960), Zehner et Schlünder (1970), Bauer et Schlünder (1978) et Specchia et al. (1980). Dans notre étude, la conductivité thermique équivalente est déterminée par la corrélation de Zehner et Schlünder (1970), définie par :

$$\frac{\lambda_{eq}}{\lambda_f} = 1 - \sqrt{1 - \epsilon} + \frac{2\sqrt{1 - \epsilon}}{1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_s}B} \left(\frac{\left(1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_s}\right)B}{\left(1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_s}B\right)^2} \ln \left(\frac{\lambda_s}{B\lambda_f} \right) - \frac{B+1}{2} - \frac{B-1}{1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_s}B} \right) \quad (6.7)$$

où B suit la loi suivante pour les particules sphériques :

$$B = 1,25 \left(\frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \right)^{10/9} \quad (6.8)$$

Propriétés physico-chimiques des deux phases

Les valeurs des propriétés physico-chimiques résultantes sont présentées dans le tableau 6.2.

TAB. 6.2 – Propriétés physico-chimiques du fluide équivalent

Masse volumique (ρ_{eq}) [kgm^{-3}]	1995,4
Capacité calorifique (c_{peq}) [$Jkg^{-1}m^{-3}$]	2484
Conductivité thermique (λ_{eq}) [$Wm^{-1}K^{-1}$]	0,681

6.3.2 Conditions initiales et aux limites

– Initialement, le liquide est à une température T_0 et s'écoule avec une vitesse axiale u_i^i :

$$t = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad 0 \leq z \leq H \Rightarrow u_{zt} = u_i^i, \quad (6.9a)$$

$$\text{et} \quad T = T_0 \quad (6.9b)$$

- On considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0, \forall t, \forall z \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial u_l}{\partial r} = \frac{\partial T}{\partial r} = 0, \quad (6.10)$$

- À l'entrée on impose des vitesses de liquide axiales uniformes, des vitesses radiales nulles et une température T_0 :

$$z = 0, \forall r, \forall t \Rightarrow u_{lz} = u_l^e, \quad (6.11a)$$

$$u_{lr} = 0 \quad (6.11b)$$

$$\text{et } T = T_0 \quad (6.11c)$$

- À la sortie du réacteur on considère que tous les gradients axiaux sont nuls :

$$z = H, \forall r \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{\partial u_l}{\partial z} = \frac{\partial T}{\partial z} = 0 \quad (6.12)$$

- Les conditions d'adhérence à la paroi sont imposées :

$$r = R_c, \forall t, \forall z \Rightarrow u_l = 0, \quad (6.13)$$

Concernant la température de paroi, les simulations sont effectuées pour deux conditions aux limites :

1. température constante à la paroi :

$$r = R \text{ on a } T = T_w \quad (6.14)$$

2. flux de chaleur, q_w , constant à la paroi,

$$r = R \text{ on a } -\lambda \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=R} = q_w \quad (6.15)$$

6.3.3 Solutions analytiques

Température imposée à la paroi

En négligeant la conduction axiale devant la conduction radiale, la solution analytique en régime stationnaire est exprimée par (Djelveh et Bugarel, 1982) :

$$\frac{T_w - T}{T_w - T_0} = 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_0(\kappa_n r) \exp\left(-\frac{\kappa_n^2 z}{Pe_r R_c}\right)}{\kappa_n J_1(\kappa_n)}, \quad (6.16)$$

où κ_n désigne les racines de la fonction de Bessel de 1^{ère} espèce d'ordre zéro ($J_0(x) = 0$) et Pe_r est le nombre adimensionnel de Péclet radiale qui s'écrit :

$$Pe_r = \frac{\rho_l U_l C_{pl} R_c}{\Lambda_r} \quad (6.17)$$

Ce critère adimensionnel caractérise la dispersion radiale du liquide.

Flux constant à la paroi

La solution analytique en négligeant la conduction axiale et en régime stationnaire s'écrit comme suit (Carslaw et Jaeger, 1959) :

$$T - T_0 = \frac{q_w R_c}{\lambda_r} \left\{ \frac{2az}{R_c^2} + \frac{r^2}{2R_c^2} - \frac{1}{4} - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \left[\exp \left(-\frac{a\alpha_n^2 z}{R_c^2} \right) \frac{J_0 \left(\alpha_n \frac{r}{R_c} \right)}{\alpha_n^2 J_0(\alpha_n)} \right] \right\} \quad (6.18)$$

Où α_n désigne les racines de la fonction de Bessel de 1^{ère} espèce d'ordre 1 ($J_1(x) = 0$) et a est une constante définie par :

$$a = \frac{\Lambda_r}{\rho_l U_l C_{pl}} \quad (6.19)$$

6.3.4 Résultats de simulations du modèle homogène

Température imposée en paroi

Dans cette étude, la température de la paroi du réacteur est imposée et vaut 310 K et la vitesse débitante est fixée à 4 mm/s. Des exemples de résultats de calcul sont mis en évidence dans les figures 6.1 et 6.2 pour différentes positions radiales et axiales. Proche de la paroi ($r=15,2$ mm), une augmentation très rapide est remarquée juste après l'entrée du réacteur (Fig. 6.1). Les températures atteignent ainsi des valeurs voisines de celles de la paroi (310 K). En revanche, plus on s'éloigne de la paroi, plus la variation axiale de température devient faible jusqu'à avoir un profil presque constant à proximité du centre de la colonne ($r=0,8$ mm) (Fig. 6.1). Cela est dû essentiellement à la proximité géographique par rapport à la paroi. En effet, plus on s'éloigne de la source de chaleur (paroi) plus la température devient faible.

La Figure 6.2 présente les profils radiaux pour trois positions axiales : juste après l'entrée ($z=2,1$ cm), au milieu ($z=21$ cm) et juste avant la sortie ($z=39,9$ cm) du réacteur. On remarque que plus on s'éloigne de l'entrée du réacteur, plus l'augmentation de température au sein du lit est plus importante. Le profil radial devient ainsi de moins en moins raide. Ce comportement est le résultat de la dispersion thermique radiale.

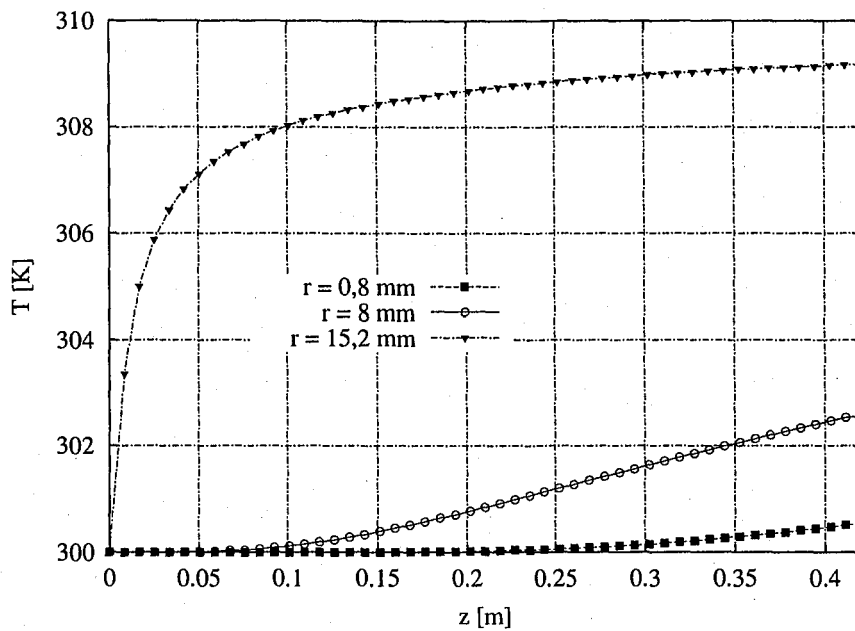


FIG. 6.1 - Profils axiaux de température à différentes positions radiales pour le modèle homogène ($H=42$ cm, $R_c=16$ mm et $\epsilon=0,4$).

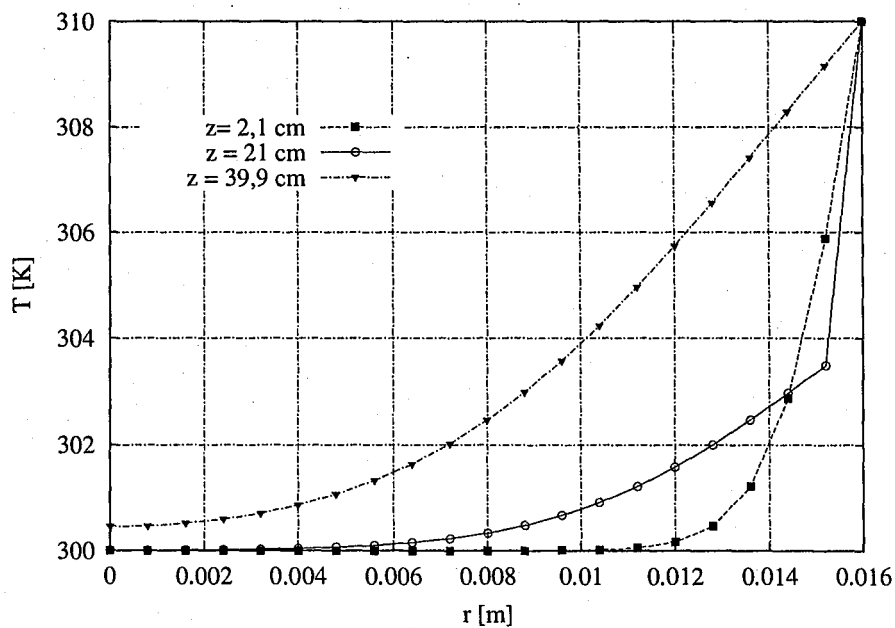


FIG. 6.2 - Profils radiaux de température à différentes positions axiales pour le modèle homogène ($H=42$ cm, $R_c=16$ mm et $\epsilon=0,4$).

Les figures 6.3 et 6.4 comparent les profils de température respectivement axiaux et radiaux obtenus par les calculs à la solution analytique.

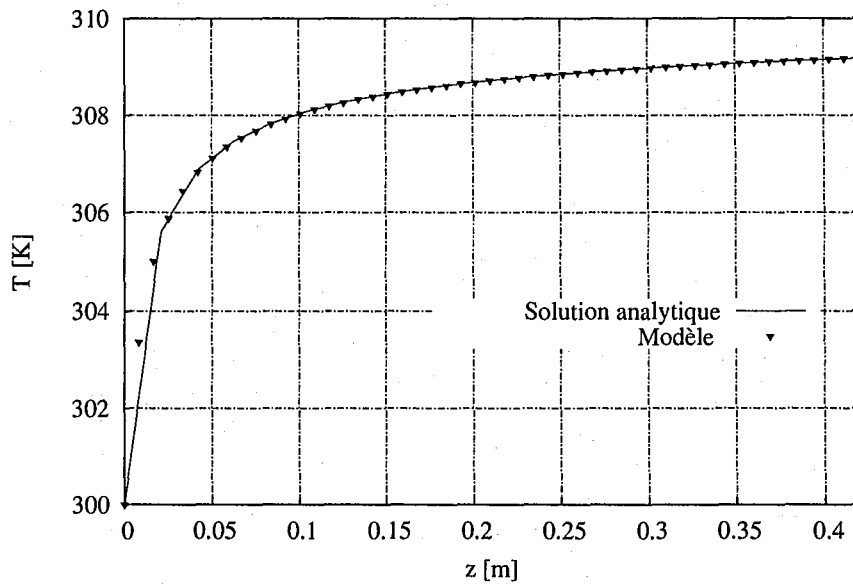


FIG. 6.3 – Comparaison des résultats de simulation à la solution analytique dans la direction axiale pour le modèle homogène et pour une température constante à la paroi ($r=15,2$ mm, $H=42$ cm, $R_c=16$ mm et $\epsilon=0,4$).

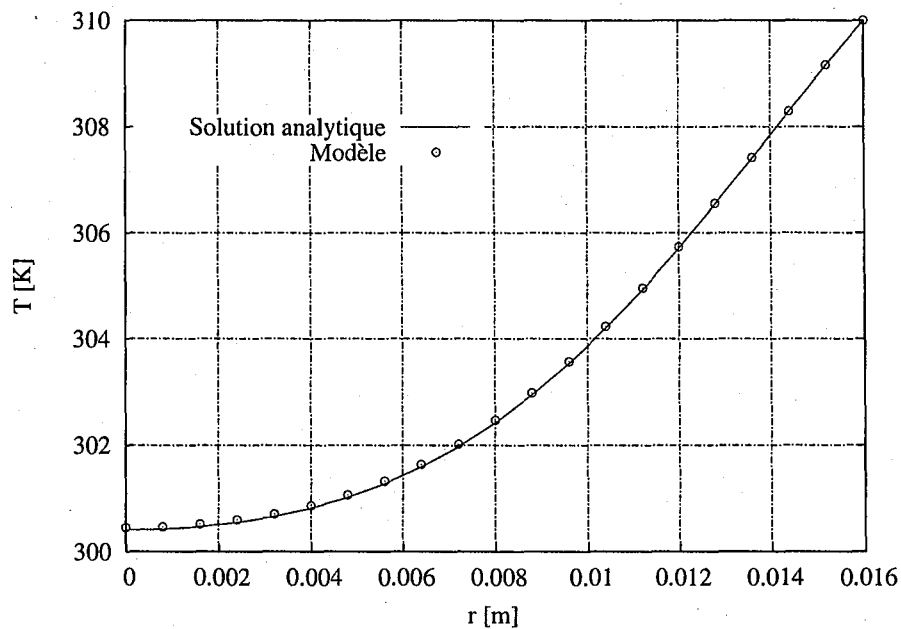


FIG. 6.4 – Profils de température et solution analytique du modèle homogène dans la direction radiale et pour une température constante à la paroi ($z=39,9$ cm, $H=42$ cm, $R_c=16$ mm et $\epsilon=0,4$).

Dans le cas d'un fluide équivalent, on a ainsi noté que les résultats de calculs reproduisent parfaitement les résultats analytiques (équation 6.16) du modèle homogène. Aussi bien dans la direction axiale (Fig. 6.3) que dans la direction radiale (Fig. 6.4).

Pour une température imposée en paroi, la simulation du transfert de chaleur dans un lit fixe monophasique a été effectuée avec succès en utilisant le modèle homogène. Par la suite, ces résultats seront comparés à ceux obtenus en utilisant le modèle hétérogène.

Flux constant à la paroi

Dans ces simulations, un flux de 1000 W.m^{-2} est imposé à la paroi du réacteur. La comparaison des résultats des simulations à la solution analytique (Eq. 6.18) dans la direction axiale et radiale est présentée respectivement dans les figures 6.5 et 6.6.

Le profil de température axiale au voisinage de la paroi ($r=15,2 \text{ mm}$) obtenus par simulation est pratiquement identique à celui de la solution analytique (Fig. 6.5). En revanche, dans la direction radiale une légère différence ($\Delta T_{max} \cong 1 \text{ K}$) est observée entre les températures issues de la solution analytique et les températures de calcul à la sortie du réacteur ($z=39,9 \text{ cm}$) (Fig. 6.6). Cette différence peut être due à des erreurs d'ordre numériques notamment en estimant la solution analytique qui dépend des fonctions de Bessel (Eq. 6.18).

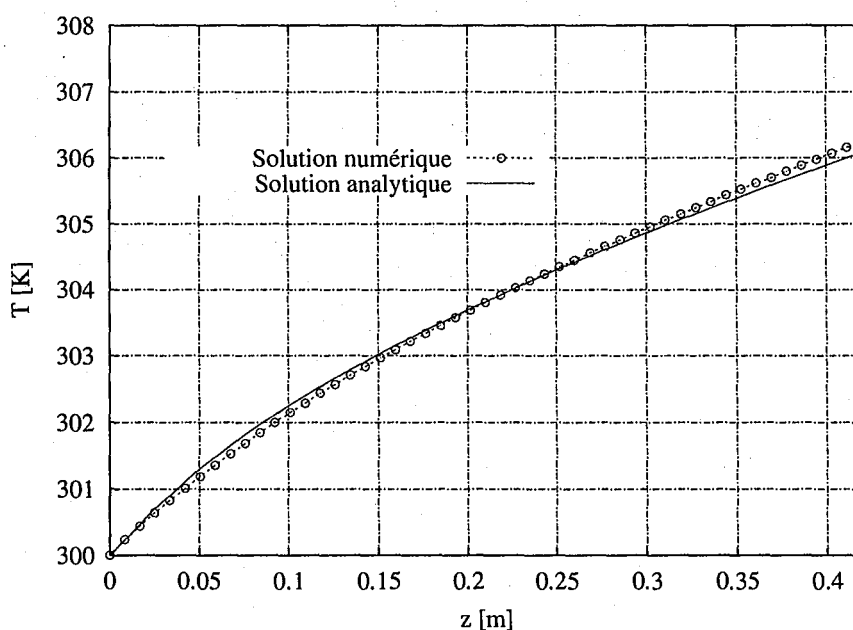


FIG. 6.5 - Comparaison des profils de température numérique et la solution analytique du modèle homogène pour un flux constant à la paroi dans la direction radiale ($r = 15,2 \text{ mm}$, $q_w = 1000 \text{ W.m}^{-2}$, $H = 42 \text{ cm}$, $R_c = 16 \text{ mm}$ et $\epsilon = 0,4$).

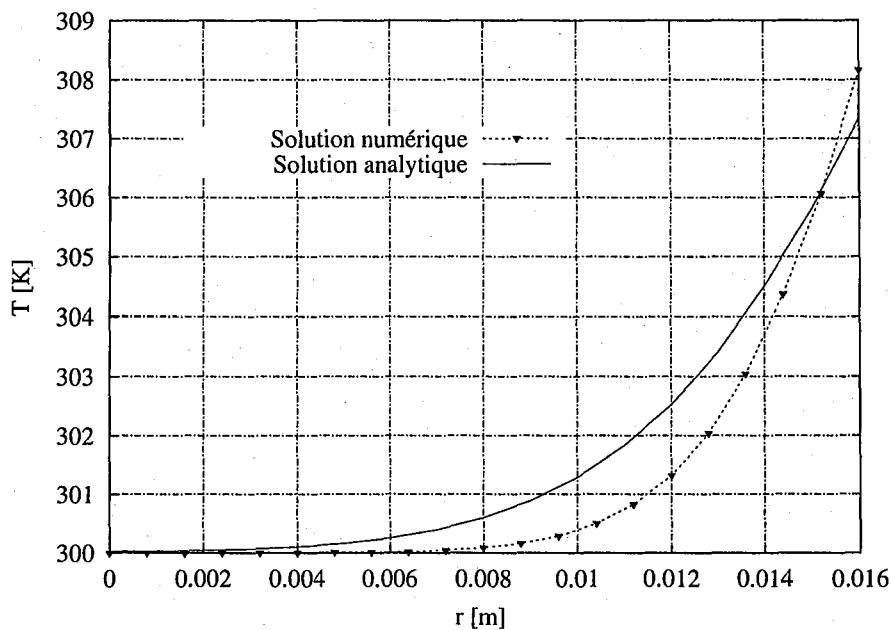


FIG. 6.6 – Comparaison des résultats de simulation à la solution analytique du modèle homogène dans la direction radiale et pour un flux constant à la paroi ($z = 39,9$ cm, $q_w = 1000$ W.m⁻², $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

Par la suite, les résultats de calcul obtenus pour le modèle à une température seront comparés aux résultats de simulation en utilisant le modèle à deux températures.

Remarque : la condition aux limites de flux en paroi a été implémentée dans le code de calcul en utilisant un développement limité du premier ordre de l'équation 6.15. Ainsi à la paroi on a :

$$q_w = -\lambda \frac{T_i - T_{i-1}}{\Delta r} \quad (6.20a)$$

$$\text{soit } T_i = T_{i-1} - q_w \frac{\Delta r}{\lambda} \quad (6.20b)$$

6.4 Modèle à deux températures

Dans ce modèle, la phase solide et la phase liquide sont considérées distinctement avec une température pour chacune des phases. Dans ce cas, l'équation 6.4 appliquée aux deux phases ($k = l, s$) exprime la variation de température dans le réacteur. La modélisation du terme d'échange entre phases sera abordée par la suite.

6.4.1 Conditions initiales et aux limites

- Initialement, la phase k (liquide ou solide) est à une température T_0 et le liquide s'écoule avec une vitesse axiale u_l^i :

$$t = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad 0 \leq z \leq H \Rightarrow u_{zl} = u_l^i, \quad (6.21a)$$

$$\text{et} \quad T_k = T_0 \quad (6.21b)$$

- On considère une symétrie par rapport à l'axe $r = 0$:

$$r = 0, \quad \forall t, \quad \forall z \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial u_l}{\partial r} = \frac{\partial T_k}{\partial r} = 0, \quad (6.22)$$

- À l'entrée, on impose des vitesses de liquide axiales uniformes, des vitesses radiales nulles et le liquide est à une température T_0 :

$$z = 0, \quad \forall r \Rightarrow u_{lz} = u_l^e, \quad (6.23a)$$

$$u_{lr} = 0 \quad (6.23b)$$

$$\text{et} \quad T_l = T_0 \quad (6.23c)$$

- À la sortie du réacteur on considère que tous les gradients axiaux sont nuls :

$$z = H, \quad \forall r \Rightarrow \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{\partial u_l}{\partial z} = \frac{\partial T_k}{\partial z} = 0 \quad (6.24)$$

- Les conditions d'adhérence à la paroi sont imposées :

$$r = R_c, \quad \forall t, \quad \forall z \Rightarrow u_l = 0, \quad (6.25)$$

Comme pour le modèle homogène, les simulations sont effectuées pour deux conditions aux limites de paroi :

1. température constante à la paroi,

$$r = R_c \quad \text{on a} \quad T_k = T_w \quad (6.26)$$

2. flux de chaleur constant à la paroi,

$$r = R_c \quad \text{on a} \quad -(1 - \epsilon)\lambda_s \frac{\partial T_s}{\partial r} \Big|_{r=R_c} - \epsilon\lambda_f \frac{\partial T_f}{\partial r} \Big|_{r=R_c} = q_s + q_f = q_w \quad (6.27)$$

La répartition du flux de chaleur entre les deux phases (q_f/q_s) sera abordée par la suite.

6.4.2 Modélisation de l'échange de chaleur liquide-solide

Contrairement au modèle homogène, le modèle à deux températures ne suppose pas un équilibre thermique local. Ainsi, le transfert de chaleur est quantifié dans chacune des deux phases. Par conséquent, il va falloir prendre en compte l'échange de chaleur entre

les deux phases. L'équation 6.28 exprime la manière de modéliser le terme d'échange de chaleur entre le liquide et le solide :

$$\langle q_0 \cdot \nabla \alpha_k \rangle = \theta_k \theta_l (T_k - T_l) X_r = h_{fs} A_s (T_k - T_l) \quad (6.28)$$

où A_s est la surface spécifique de contact fluide-solide. Pour le cas de particules sphériques, $A_s = \frac{6(1-\epsilon)}{d_p}$.

Ainsi le coefficient d'échange de chaleur fluide-solide, X_r , s'écrit :

$$X_r = \frac{6h_{fs}}{d_p \epsilon} \quad (6.29)$$

Le coefficient de transfert de chaleur liquide/solide, h_{fs} , est exprimé à l'aide de corrélations, généralement données sous la forme des variations de Nusselt, Nu , en fonction du nombre de Reynolds et du nombre de Prandtl, Pr . La corrélation la plus utilisée dans la littérature est celle de Gnielinski (1983), exprimée par :

$$Nu = (1 + 1,5(1 - \epsilon)) Nu_{\text{sphère}} \quad (6.30)$$

$$Nu_{\text{sphère}} = 2 + \sqrt{Nu_{\text{lam}}^2 + Nu_{\text{turb}}^2} \quad (6.31)$$

$$Nu_{\text{lam}} = 0,664 Pr^{1/3} Re^{1/2} \quad (6.32)$$

$$Nu_{\text{turb}} = \frac{0,037 Pr Re^{0,8}}{1 + 2,433 Re^{-0,1} (Pr^{2/3} - 1)} \quad (6.33)$$

Cette corrélation est utilisée dans notre cas.

Les équations du modèle et les conditions initiales et aux limites associées ainsi que les modèles de fermetures sont implémentés et ensuite résolus par le code CFDLib.

6.4.3 Résultats de simulations

Température imposée en paroi

Les simulations ont été effectuées pour une température à la paroi du réacteur de $T_w = 310$ K. Les figures 6.7 et 6.8 présentent respectivement le profil axial et radial des températures de la phase liquide et solide. On remarque que l'écart entre les températures du liquide et du solide est négligeable. Cela signifie que l'échange entre phases est presque instantané et le milieu poreux est en équilibre thermique local. Ce résultat est principalement dû à la valeur, relativement élevée du coefficient d'échange de chaleur déterminé en utilisant la relation de Gnielinski (1983) ($h_{fs} = 3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$).

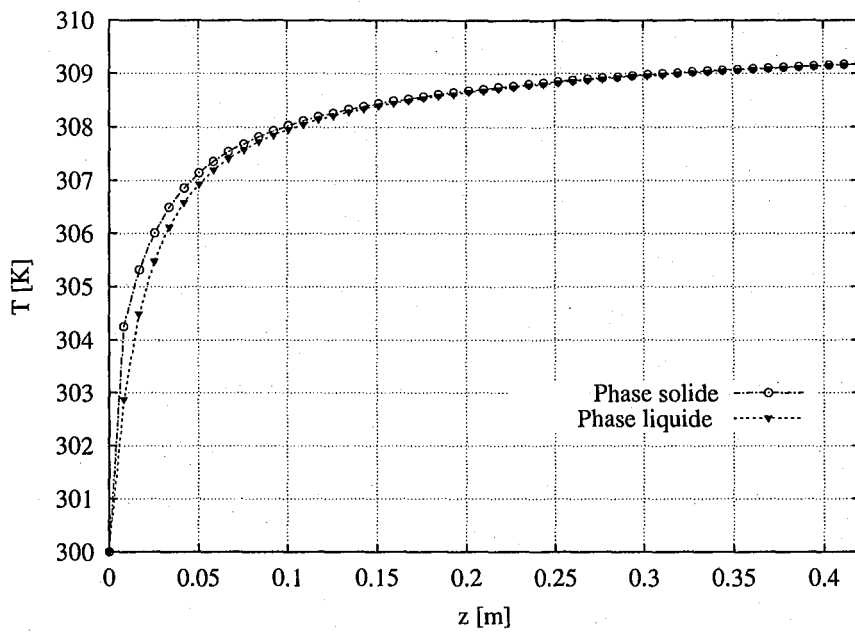


FIG. 6.7 – Température du solide et du liquide en fonction de la position axiale pour un modèle hétérogène ($r = 15,2$ mm, $h_{fs} = 3035$ W.m⁻²K⁻¹, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

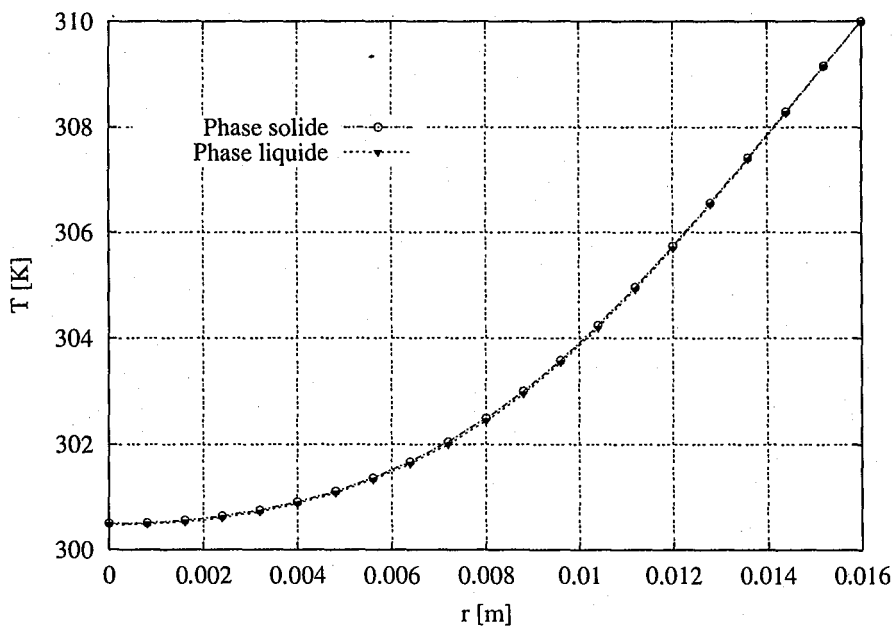


FIG. 6.8 – Profil radial de température du liquide et du solide pour un modèle hétérogène ($z = 39,9$ cm, $h_{fs} = 3035$ W.m⁻²K⁻¹, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

L'écart de température de 1,5 K est constaté à l'entrée du réacteur. Nous n'avons trouvé aucune explication à cet écart de température.

Pour comparer les résultats au modèle une température, une température moyenne, \bar{T} , est définie à partir des températures du liquide et du solide.

$$\bar{T} = \frac{(1 - \epsilon)\rho_s C_{ps} T_s + \epsilon \rho_f C_{pf} T_f}{(1 - \epsilon)\rho_s C_{ps} + \epsilon \rho_f C_{pf}} \quad (6.34)$$

Cette température est comparée à la température obtenue dans le cas du modèle homogène dans les mêmes conditions opératoires. Les figures 6.9 et 6.10 comparent respectivement les profils axiaux et radiaux de température obtenus en utilisant le modèle à une température et la température moyenne du modèle à deux températures. Ces deux figures montrent bien que les résultats de simulation en utilisant un fluide équivalent, sont en parfait accord avec les résultats du modèle à deux températures (milieu diphasique). Cette similitude des résultats de simulation confirme le fait que les deux phases sont au voisinage de l'équilibre thermique local pour les conditions opératoire utilisées.

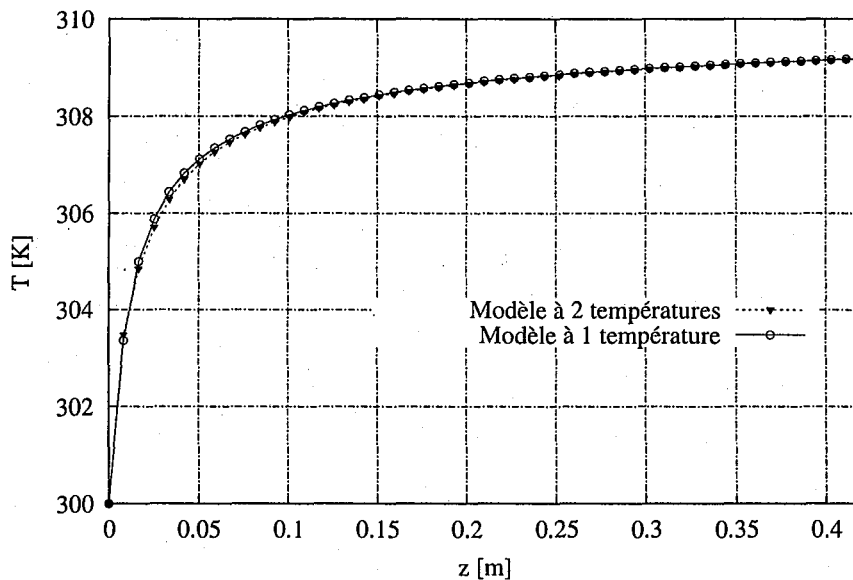


FIG. 6.9 – Comparaison des résultats axiaux de calcul obtenus en utilisant le modèle à une température et la température moyenne du modèle à deux températures ($r = 15,2$ mm, $h_{fs} = 3035$ W.m⁻²K⁻¹, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

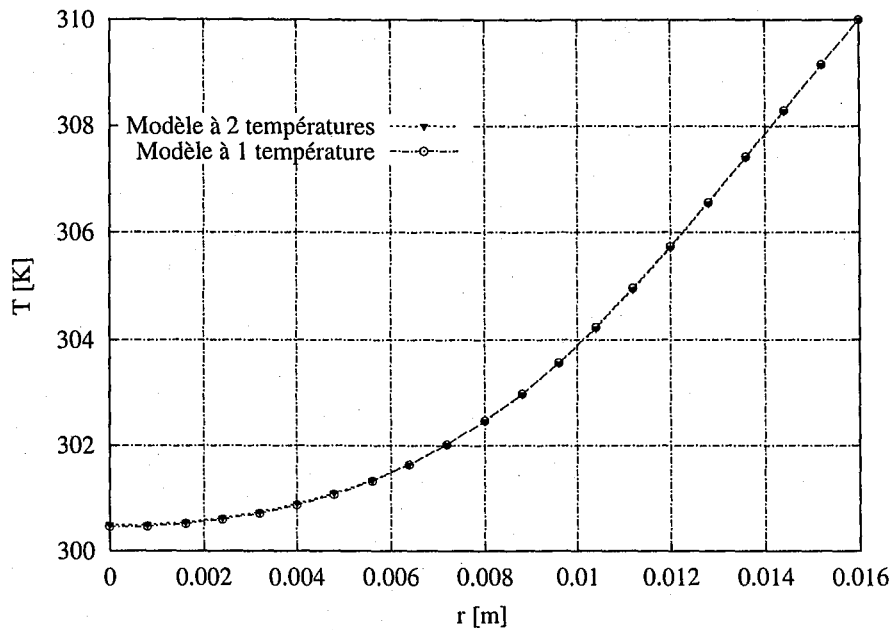


FIG. 6.10 – Profils radiaux de température obtenus en utilisant le modèle à une température et température moyenne du modèle à deux températures ($z = 39,9$ cm, $h_{fs} = 3035$ W.m⁻²K⁻¹, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

Pour étudier l'influence de l'échange de chaleur entre les deux phases, trois valeurs de h_{fs} sont utilisées : $h_{fs} = 0$, h_{fs} fourni par la corrélation de Gnielinski (1983) (étudié précédemment), et cette valeur divisée par 100 ($h_{fs}(\text{Gnielinski (1983)})/100$).

Dans le cas où on néglige complètement l'échange de chaleur, les figures 6.11 et 6.12 montrent un écart de température assez important entre les deux phases aussi bien dans la direction radiale que dans la direction axiale. Du fait de sa diffusivité thermique élevée, la chaleur a tendance à se propager beaucoup plus facilement dans la phase solide que dans la phase liquide.

En outre, dans le cas où le coefficient de transfert de chaleur est réduit d'un rapport de 100, l'écart de température entre phases devient moins accentué (Fig. 6.13 et 6.14). Toutefois, cet écart est plus important à l'entrée du réacteur. Cet écart est dû à la différence de diffusivité thermique entre les deux phases. En effet, à cause de sa diffusivité élevée, le solide atteint une température voisine de celle de la paroi quasiment à l'entrée du réacteur. En revanche, la dispersion axiale de la chaleur au sein du liquide s'effectue de manière moins rapide. En outre, plus on avance dans le réacteur plus l'écart se réduit. On peut remarquer aussi que la température du fluide est plus sensible à la variation du coefficient de transfert thermique que celle du solide.

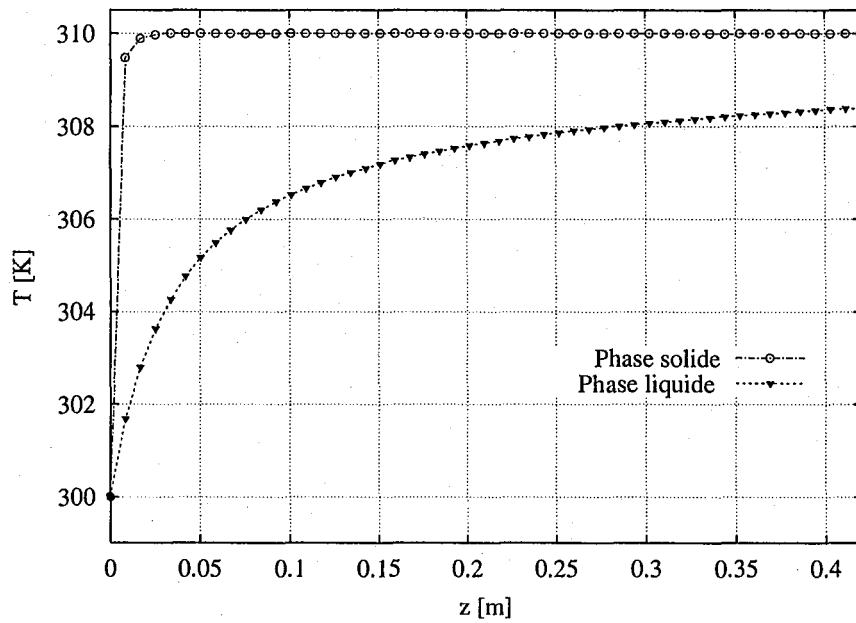


FIG. 6.11 – Variations axiales de température de la phase solide et de la phase liquide en absence d'échange de chaleur solide-liquide, $h_{fs} = 0$ ($r = 15,2$ mm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

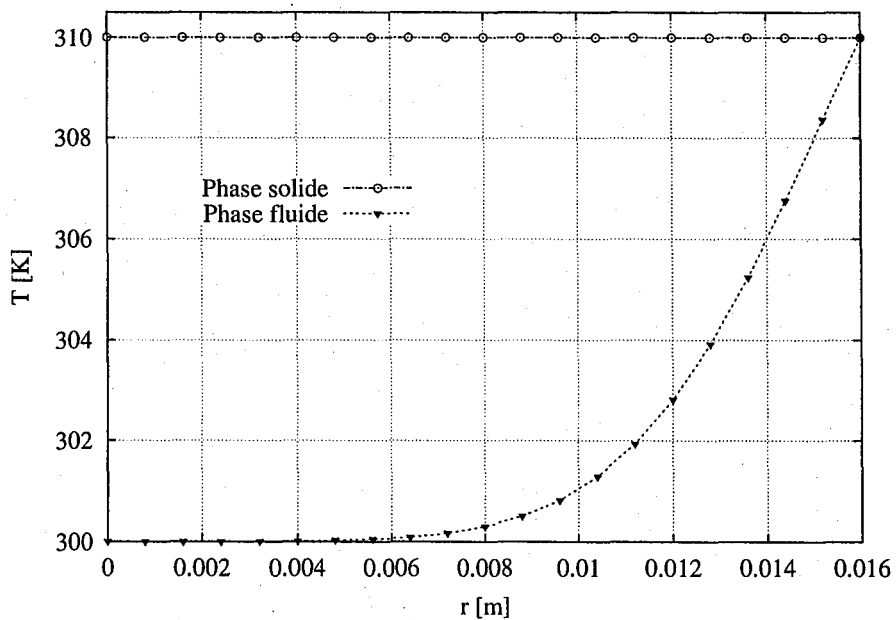


FIG. 6.12 – Profils radiaux des températures du solide et du liquide en absence d'échange de chaleur solide-liquide, $h_{fs} = 0$ ($z = 39,9$ cm, $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

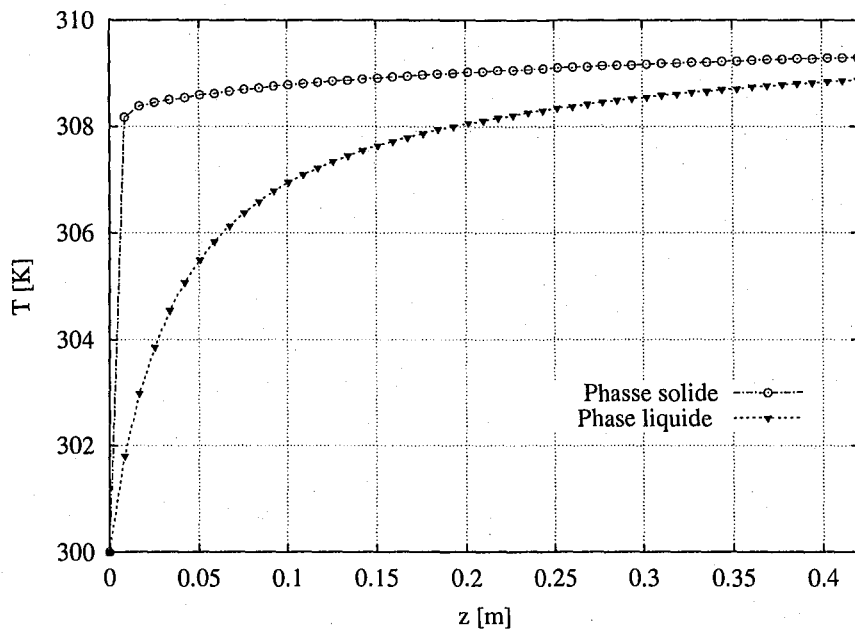


FIG. 6.13 – Variations axiales des températures du solide et du liquide pour un coefficient d'échange de chaleur de $h_{fs} = 30,35 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$ ($r = 15,2 \text{ mm}$, $H = 42 \text{ cm}$, $R_c = 16 \text{ mm}$ et $\epsilon = 0,4$).

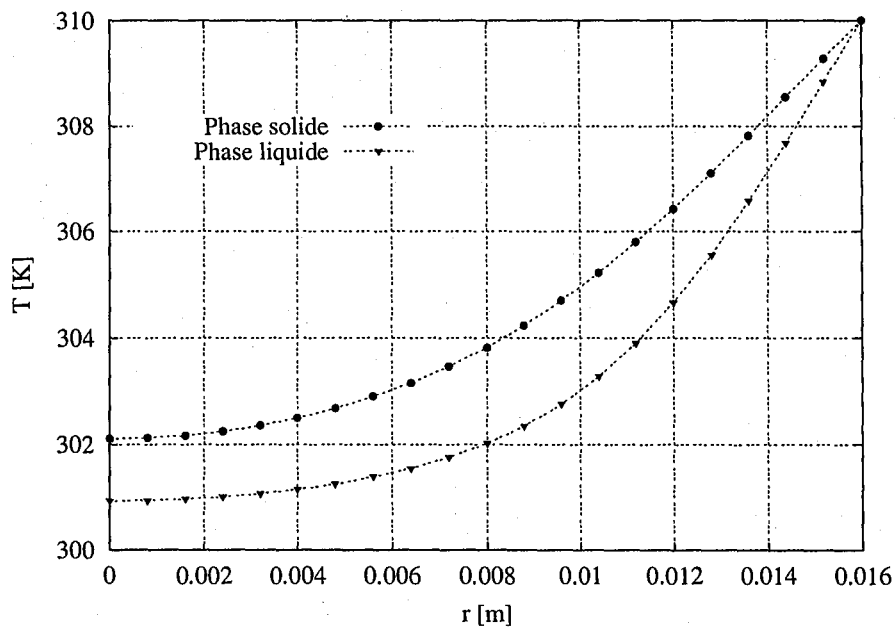


FIG. 6.14 – Profils radiaux des températures du solide et du liquide pour un coefficient d'échange de chaleur de $h_{fs} = 30,35 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$ ($z = 39,9 \text{ cm}$, $H = 42 \text{ cm}$, $R_c = 16 \text{ mm}$ et $\epsilon = 0,4$).

La figure 6.15 présente les variations axiales de la température moyenne pour les trois coefficients d'échange de chaleur $h_{fs} = 0$; 30,35 et 3035 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\text{K}^{-1}$. Les trois profils sont sensiblement identiques. Toutefois, un faible écart ($< 0,5$ K) est remarqué à l'entrée du réacteur pour $h_{fs} = 0$. On peut ainsi avancer que pour les conditions opératoires utilisées, la température moyenne au sein du lit est indépendante du coefficient d'échange de chaleur liquide-solide.

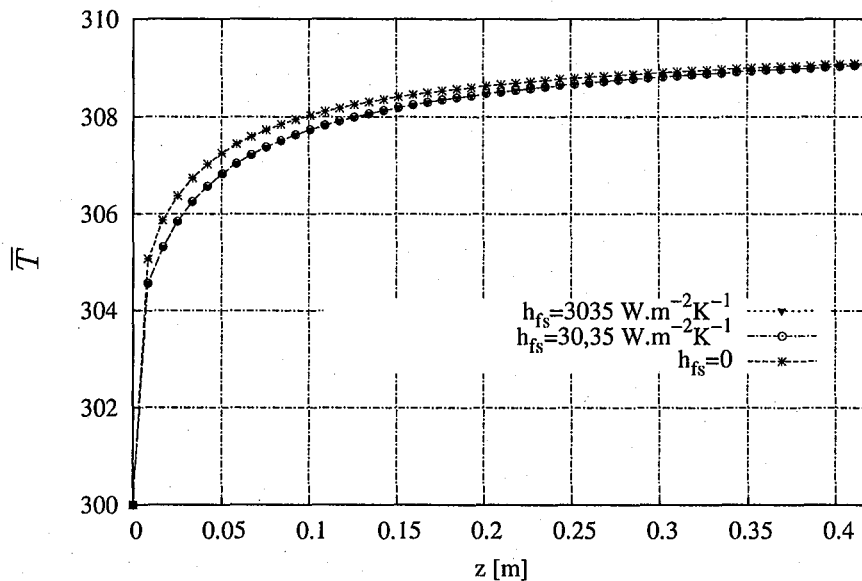


FIG. 6.15 - Variations axiales de la température moyenne pour les trois coefficients d'échange de chaleur, $h_{fs} = 0$; 30,35; 3035 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\text{K}^{-1}$ ($r = 15,2$ mm $H = 42$ cm, $R_c = 16$ mm et $\epsilon = 0,4$).

Flux imposé en paroi

Pour la condition aux limites de flux à la paroi, le problème de répartition du flux, q_w , entre les deux phases se pose. Deux configurations ont été étudiées (Alazmi et Vafai, 2002) :

1. **première configuration (cas1)** : le rapport des flux de chaleur reçus par les deux phases est égal au rapport de leurs fractions volumiques :

$$\frac{q_f}{q_s} = \frac{\epsilon}{(1 - \epsilon)}, \quad (6.35)$$

soit :

$$q_s = (1 - \epsilon)q_w \quad (6.36a)$$

$$\text{et } q_f = \epsilon q_w \quad (6.36b)$$

2. **deuxième configuration (cas2)** : le rapport des flux de chaleur reçus par les deux phases est défini comme suit :

$$\frac{q_f}{q_s} = \frac{\lambda_f \epsilon}{\lambda_s (1 - \epsilon)}, \quad (6.37)$$

Dans ce cas, les flux de chaleur pour chaque phase s'écrit :

$$q_s = \frac{\lambda_s (1 - \epsilon)}{\lambda_s (1 - \epsilon) + \lambda_f \epsilon} q_w \quad (6.38a)$$

$$\text{et } q_f = \frac{\lambda_s \epsilon}{\lambda_s (1 - \epsilon) + \lambda_f \epsilon} q_w \quad (6.38b)$$

Les simulations ont été menées pour un flux de chaleur à la paroi, q_w , de 1000 W.m^{-2} . Le tableau 6.3 résume les valeurs numériques des flux de chaleur des deux phases pour les deux configurations de distribution.

TAB. 6.3 – Répartition des flux de chaleur entre les phases solide et liquide ($q_w = 1000 \text{ W.m}^{-2}$)

	$\frac{q_f}{q_s}$	$q_s \text{ W.m}^{-2}$	$q_f \text{ W.m}^{-2}$
1 ^{ère} Configuration	0,667	600	400
2 ^{ème} Configuration	0,532	651	349

Résultats de simulation

Les profils radiaux et axiaux de température du liquide à différentes positions dans la colonne et pour la première configuration de répartition des flux sont présentés sur les figures 6.16 et 6.17. On peut noter que plus on avance dans le réacteur, plus le gradient de température entre la paroi et le centre de la colonne s'accroît (Fig.6.16). De plus, on peut noter que la différence de température entre l'entrée et la sortie du réacteur est beaucoup plus significative à la paroi du réacteur (Fig. 6.17). Cela est dû essentiellement à la proximité géométrique par rapport à la source de chaleur située notamment à la paroi.

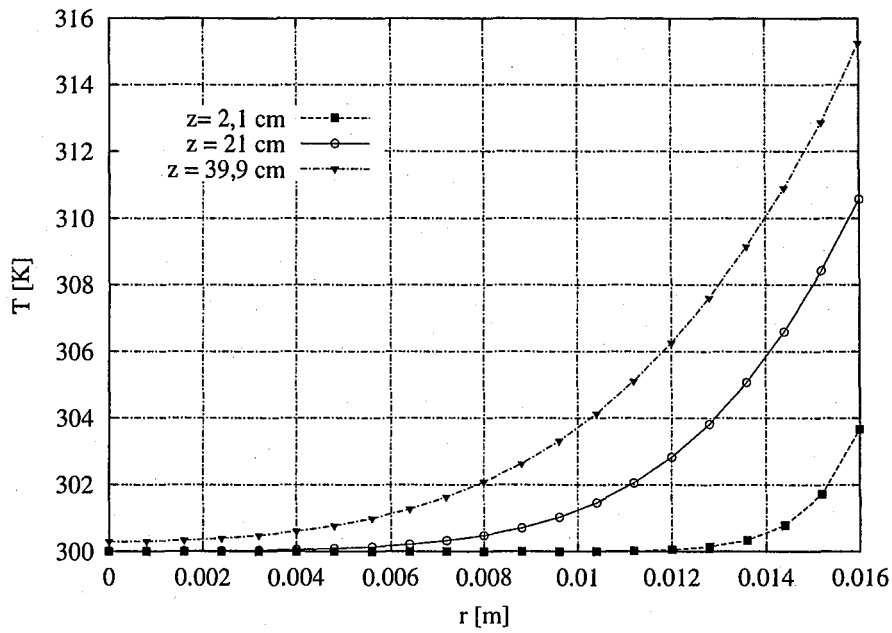


FIG. 6.16 – Température du liquide en fonction de la position radiale pour trois positions axiales. Première configuration de répartition de flux (cas1) ($q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

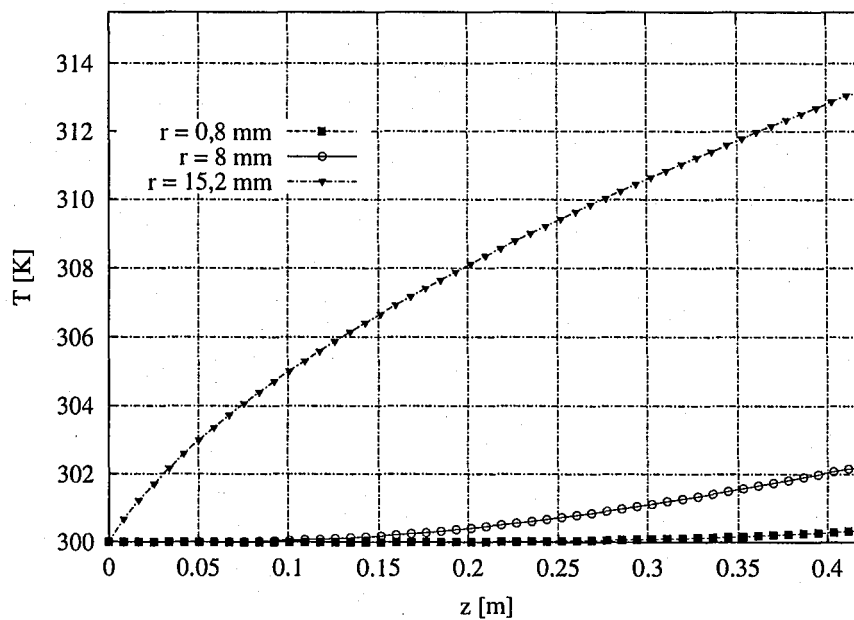


FIG. 6.17 – Variations axiales de la température du liquide pour trois positions radiales. Première configuration de répartition de flux (cas1) ($q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

Les figures 6.18 et 6.19 représentent respectivement les variations radiales et axiales des températures de la phase liquide et la phase solide pour les deux configurations. Elles montrent un écart de température très faible entre le liquide et le solide. Ces résultats montrent que dans les conditions de fonctionnement définies notamment par la distribution des flux, le réacteur est en équilibre thermique local.

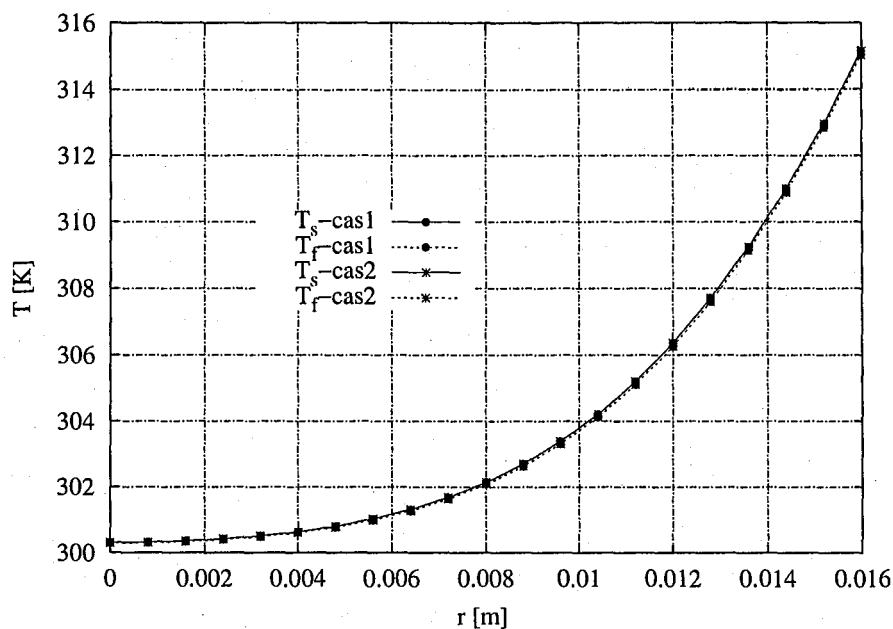


FIG. 6.18 – Températures du liquide et du solide en fonction de la position radiale pour les deux cas de distribution de flux de chaleur entre phases. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($z=39,9 \text{ cm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

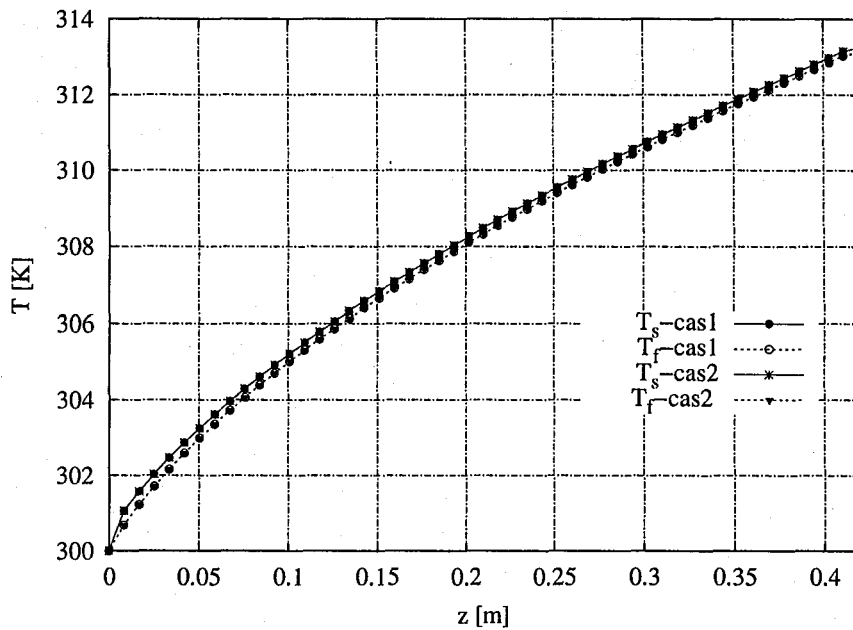


FIG. 6.19 – Profils axiaux des températures du solide et du liquide pour les deux cas de distribution de flux de chaleur entre phase. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($r=15,2 \text{ mm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

Les résultats de calculs du transfert de chaleur en utilisant le modèle à deux températures sont comparés aux résultats de simulation du modèle à une température dans les figures 6.20 et 6.21. Que ce soit pour le profil axial (figure 6.20) ou radial (figure 6.21), les températures du fluide équivalent et la température moyenne obtenues en considérant le milieu diphasique sont sensiblement identiques pour les deux configurations de distribution. Ce qui nous amène à dire que le modèle homogène, relativement plus simple, suffit largement à décrire le transfert de chaleur du problème considéré.

La similitude des résultats entre les deux configurations de répartition de transfert de chaleur, est dû à la faible différence de flux de chaleur entre les deux cas (Tab. 6.3). Elle est exprimée comme suit :

$$(\Delta q)_{C1-C2} = q_s(\text{cas1}) - q_s(\text{cas2}) = q_l(\text{cas1}) - q_l(\text{cas2}) = 51 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1} \quad (6.39)$$

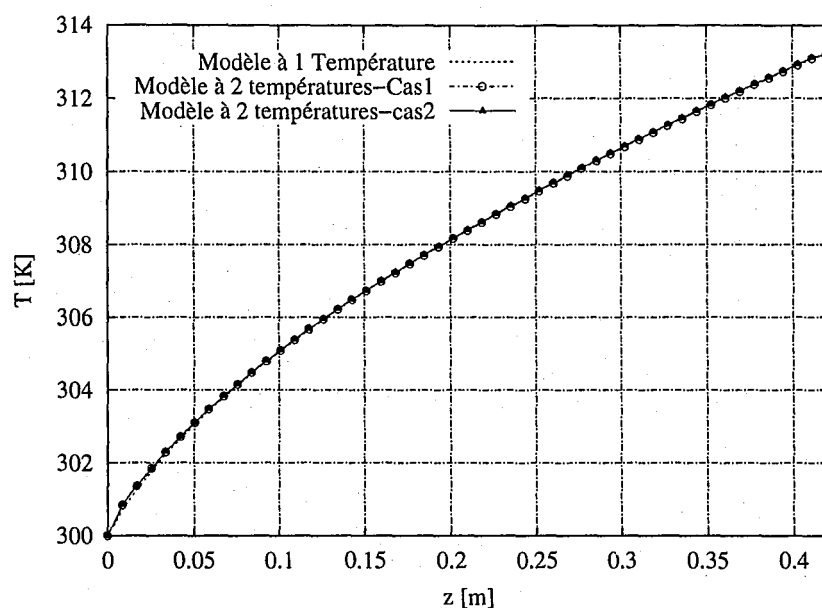


FIG. 6.20 – Comparaison des résultats axiaux entre le modèle à une température et le modèle à deux températures pour une condition de flux constant à la paroi. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($r=15,2 \text{ mm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

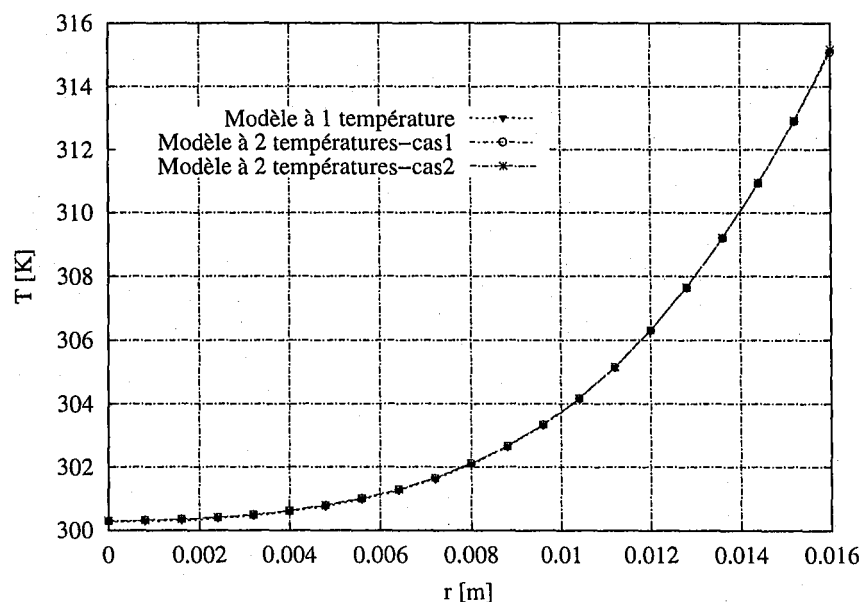


FIG. 6.21 – Comparaison des résultats radiaux entre le modèle à une température et le modèle à deux températures pour une condition de flux constant à la paroi. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l=349 \text{ W.m}^{-2}$ ($z=39,9 \text{ cm}$, $h_{fs}=3035 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

Comme dans le cas de température constante à la paroi, le coefficient de transfert de chaleur obtenu par la relation de Gnielinski (1983) est réduit d'un facteur de 100 dans le but d'étudier l'effet de l'échange de chaleur entre les deux phases. Les figures 6.22 et 6.23 présentent les profils respectivement radiaux et axiaux, de température du liquide et du solide pour les deux configurations de répartition du flux (cas1, Eq. 6.35; cas2, Eq. 6.37). On peut noter un écart assez important de température entre la phase liquide et la phase solide aussi bien dans la direction axiale ($\Delta T_{maxZ} \approx 8$ K) que dans la direction radiale ($\Delta T_{maxR} \approx 6$ K).

Par ailleurs, les températures obtenues pour les deux cas de répartition du flux, sont très proches. On remarque néanmoins que le gradient de température solide-liquide est légèrement plus important quand on utilise la deuxième configuration (cas2).

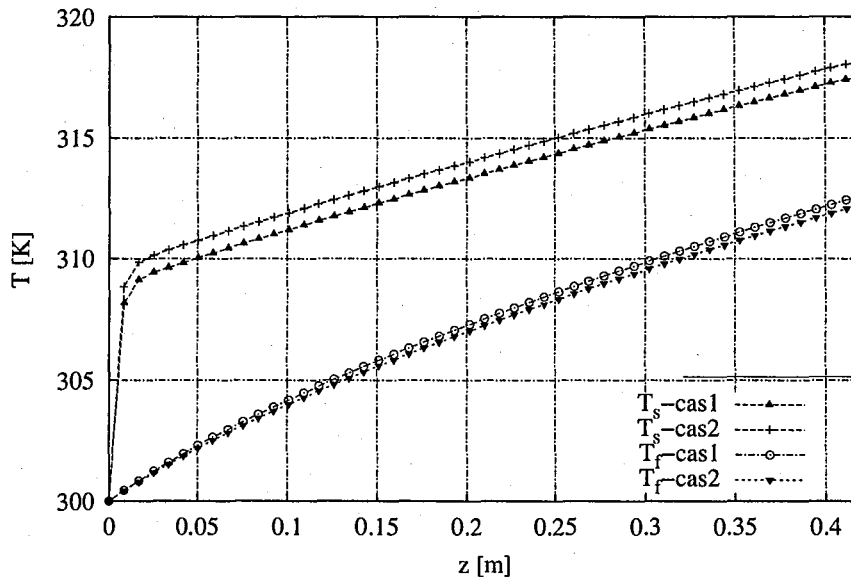


FIG. 6.22 - Températures axiales du liquide et du solide pour un coefficient d'échange $h_{fs} = 30,35 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$. Cas1 : $q_s = 600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l = 400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s = 651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l = 349 \text{ W.m}^{-2}$ ($r = 15,2 \text{ mm}$, $H = 42 \text{ cm}$, $R_c = 16 \text{ mm}$ et $\epsilon = 0,4$).

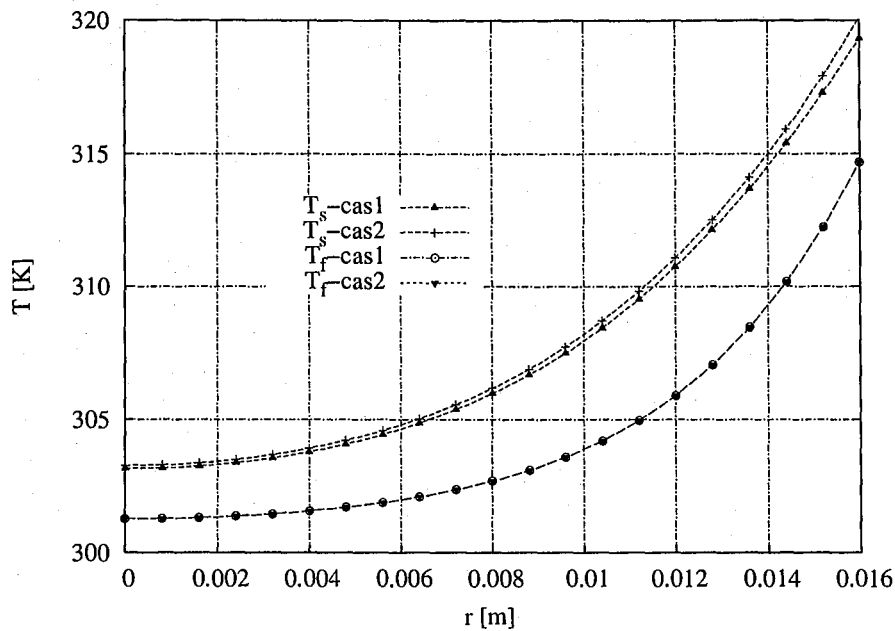


FIG. 6.23 – Températures radiales du liquide et du solide pour un coefficient d'échange $h_{fs} = 30,35 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$. Cas1 : $q_s=600 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l = 400 \text{ W.m}^{-2}$; Cas2 : $q_s=651 \text{ W.m}^{-2}$, $q_l = 349 \text{ W.m}^{-2}$ ($z=39,9 \text{ cm}$, $H=42 \text{ cm}$, $R_c=16 \text{ mm}$ et $\epsilon=0,4$).

6.5 Conclusion

L'objectif de ce chapitre est en quelque sorte de démontrer la faisabilité de l'utilisation de l'approche statistique moyennée en transfert thermique en RCLFA. Le transfert de chaleur dans un réacteur à lit fixe et à écoulement monophasique de liquide a été ainsi modélisé à l'aide des deux modèles, homogène et hétérogène. L'influence du coefficient d'échange thermique et des différentes conditions aux limites a été étudiée. Ainsi, une étude du transfert thermique pour les deux modèles de température et à différentes conditions aux limites de paroi a été menée. En outre, la répartition des flux de chaleur à la paroi entre le liquide et le solide a été étudiée pour un flux imposé en paroi. Aucune différence notable entre les deux configurations utilisées n'a été remarquée.

Les résultats de simulation sont encourageants. Toutefois, quelques améliorations peuvent être apportées. En effet, l'affinement des résultats et l'élargissement du domaine d'application du transfert thermique dans ce type de réacteur nécessite :

- la prise en compte de l'ensemble des phénomènes mis en jeu et tout particulièrement la variation des grandeurs physiques avec la température, qui ne sont pas prises en compte par le code ;
- élargir le champ de la simulation à d'autres régimes d'écoulement, conditions aux limites, et notamment les réacteurs polyphasiques ;
- l'implémentation d'une réaction chimique dans le code ;
- comparaison des simulations avec des résultats expérimentaux.

Par ailleurs, l'analyse de l'influence du transfert de chaleur entre les phases solide et fluide s'est avérée beaucoup plus délicate, notamment par rapport aux valeurs des coefficients d'échange fournies par les corrélations de la littérature. Ceci est probablement dû à la définition même du coefficient d'échange entre phases. C'est un problème qui mérite d'être davantage étudié dans le futur.

Conclusion générale et perspectives

Conclusions

L'objectif de ce travail était d'améliorer notre compréhension des phénomènes hydrodynamiques et de transfert de matière et de chaleur dans les RCLFA. Pour ce faire, la formulation statistique moyennée de Kashiwa et Rauenzahn (1994) a été utilisée pour la modélisation des écoulements en milieu poreux. Les principes de cette approche ainsi que la méthode de résolution ont été développés dans le chapitre 2.

Dans le chapitre 3, la simulation de l'hydrodynamique dans un réacteur à lit fixe et à écoulement monophasique de liquide a été menée. Un modèle du type Ergun a été utilisé pour prendre en compte les forces d'interaction entre le liquide et les particules solides et ainsi fermer le système d'équations. La variabilité radiale de la porosité a été étudiée par le biais de l'implémentation de profils de porosité. Un écoulement préférentiel du liquide a été remarqué dans la zone à forte porosité (au voisinage de la paroi).

En outre, des simulations du transfert de matière liquide/paroi ont été réalisées pour différents cas de distributions de porosité (porosité uniforme, profils de porosité). Les coefficients de transfert de matière liquide/paroi obtenus ont été confrontés aux mesures expérimentales effectuées par Naderifar (1995). Les résultats sont satisfaisants. Toutefois, on peut noter que les coefficients de transfert de matière liquide/paroi obtenus en utilisant les profils de porosité considérés sont plus importants que dans le cas de porosité uniforme. Cela est dû essentiellement au fait que le transfert a lieu à la paroi, là où la valeur de la porosité ainsi que la vitesse du liquide sont élevées.

Dans la première partie du chapitre 4, une étude de l'hydrodynamique dans un RCLFA en régimes ruisselant et dispersé a été réalisée.

En régime ruisselant, différents modèles d'interactions fluides-solide et gaz-liquide ont été utilisés dans le but de fermer le système d'équations. Nous avons ainsi montré que l'utilisation du modèle de perméabilité relative de Saez et Carbonell (1985) pour les interactions fluides-solide et le modèle des deux fluides de Attou et al. (1999) pour les interactions gaz-liquide conduisent à de meilleures estimations des résultats expérimentaux. Nous avons également remarqué, en implémentant un profil de porosité de type exponentiel, que la saturation du liquide décroît avec l'augmentation de la porosité jusqu'à atteindre des valeurs assez faibles au voisinage de la paroi.

De plus, l'étude de la distribution radiale du liquide a été menée pour une alimentation uniforme à l'entrée de la colonne. Une augmentation des débits d'alimentation de

la phase liquide ou de la phase gazeuse conduit à l'enrichissement en liquide de la zone adjacente à la paroi. Cette tendance a été remarquée dans les travaux expérimentaux de Marcandelli (1999). Toutefois, l'accord entre les proportions de liquide obtenues par simulation dans les différentes zones et les mesures expérimentales n'est pas satisfaisant. Cela peut s'expliquer par le profil de porosité considéré qui ne traduit pas parfaitement la distribution de porosité dans le lit. Par ailleurs, pour tenir compte de la singularité au voisinage de la paroi (forte porosité), un modèle à deux zones a été étudié. Les résultats sont sensiblement identiques à ceux obtenus en ne considérant qu'une zone unique.

En régime dispersé, l'étude hydrodynamique a été menée en négligeant les forces d'interaction gaz-solide (bulles complètement dispersées dans le liquide) et en modélisant l'interaction gaz-liquide par le modèle de bulles dispersées développé par Attou et Ferschneider (1999). Les résultats de simulation en termes de pertes de charge et de saturation globale sont satisfaisants.

Dans la deuxième partie du chapitre 4, les coefficients de transfert de matière liquide/paroi en régime ruisselant et dispersé ont été estimés pour différentes distributions de porosité. En comparant aux mesures expérimentales, il a été montré que les résultats du transfert de matière, aussi bien en régime ruisselant qu'en régime dispersé, sont mieux estimés pour une porosité uniforme. Cela peut s'expliquer par la non-validité du profil utilisé pour ce problème, mais aussi par la limitation des modèles de fermeture employés, notamment à la paroi où la porosité est très proche de un.

Le chapitre 5 a été consacré à la simulation de l'hydrodynamique et du transfert de matière liquide/paroi en régime pulsé induit. Nous avons ainsi étudié les propriétés hydrodynamiques de ce régime. Les résultats de calcul ont montré que les zones à forte rétention liquide perdent du liquide en traversant la colonne, ce qui est appelé communément atténuation des ondes. Par ailleurs, la vitesse de propagation des ondes a été estimée dans cette étude. La vitesse de déplacement de l'onde varie linéairement avec la vitesse moyenne de la phase liquide. En comparaison avec la littérature (Boelhouwer et al., 2001b), les résultats sont très satisfaisants.

L'influence des pulsations induites sur le transfert de matière liquide/paroi a été également traitée. Les résultats obtenus montrent que les pulsations induites ne présentent aucun intérêt par rapport au régime ruisselant (stationnaire). En effet, les coefficients de transfert de matière en régime ruisselant sont sensiblement identiques à ceux obtenus en régime pulsé induit. Ceci peut être expliqué par le comportement quasi-linéaire du coefficient de transfert de matière avec le débit liquide.

Une étude du transfert thermique pour les deux modèles, homogène et hétérogène, et pour différentes conditions aux limites de paroi et d'échange thermique entre phases a été menée dans le chapitre 6. En outre, la répartition des flux de chaleur à la paroi entre le liquide et le solide a été étudiée pour un flux imposé en paroi. Aucune différence notable entre les deux configurations utilisées n'a été remarquée.

Par ailleurs, l'analyse de l'influence du transfert de chaleur entre les phases solide et fluide s'est avérée beaucoup plus délicate, notamment par rapport aux valeurs des coefficients d'échange fournies par les corrélations de la littérature.

Perspectives

Dans cette étude, la turbulence, aussi bien dans les réacteurs à lit fixe monophasique que diphasique, n'est pas prise en compte. On peut envisager l'implémentation de modèles de turbulence adaptés aux écoulements en milieu poreux dans le code de calcul. Pour ce qui est de la porosité, l'utilisation de mesures expérimentales de porosité devrait permettre une meilleure prédiction des résultats expérimentaux.

Par ailleurs, les modèles de fermetures doivent être adaptés à la zone adjacente à la paroi où la porosité est relativement importante. La simulation du régime pulsé naturel peut être envisagée à l'avenir même si à ce jour, nous ne disposons pas encore de la connaissance physique des phénomènes qui nous permettra de le faire.

Concernant le transfert de chaleur, ces études ont donné lieu à des résultats encourageants, qui vont servir de base à de prochaines études dans le domaine des écoulements en lit fixe monophasique et diphasique. À l'avenir, on peut envisager d'élargir le champ de la simulation à d'autres conditions aux limites et d'autres réacteurs polyphasiques et tout particulièrement les RCLFA. On pourra ainsi étudier l'influence de l'alimentation périodique sur les paramètres de transfert thermique dans ce type de réacteur. Par ailleurs, la prise en compte de la variation des grandeurs physiques avec la température, notamment pour la phase gazeuse, va permettre d'affiner les résultats de calcul. Dans le but de prendre en compte l'ensemble des phénomènes mis en jeu dans les réacteurs à lit fixe, l'implémentation d'une réaction chimique dans le code de calcul est indispensable.

Enfin, il est nécessaire d'effectuer des mesures expérimentales (surtout locales) de porosité, de température, de vitesse,... dans le but de les confronter aux résultats de simulation. De plus, ces mesures peuvent servir à élaborer des modèles de fermetures plus réalistes.

Bibliographie

- M.H. Al-Dahhan, M.R. Khadilkar, Y. Wu, et M.P. Dudukovic. Prediction of pressure drop and liquid holdup in high pressure trickle-bed reactors. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 37 :793-798, 1998.
- M.H. Al-Dahhan, F. Larachi, et M.P. Dudukovic. High-pressure trickle bed reactors. *Industrial Engineering Chemical Research*, 36 :3292-3314, 1997.
- B. Alazmi et K. Vafai. Constant wall heat flux boundary conditions in porous media under local thermal non-equilibrium conditions. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45 :3071-3087, 2002.
- A. Attou, C. Boyer, et G. Ferschneider. Modelling of the hydrodynamics of the cocurrent gas-liquid trickle flow through a trickle-bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 54 :785-802, 1999.
- A. Attou et G. Ferschneider. A simple model for pressure drop and liquid hold-up in packed-bed bubble reactors. *Chemical Engineering Science*, 54 :5139-5144, 1999.
- J.-L. Auriault, P. Royer, et C. Geindreau. Filtration law for power-law fluids in anisotropic porous media. *International Journal of Engineering Science*, 40 :1151-1163, 2002.
- O. Baker. Simultaneous flow of oil and gas. *The Oil and Gas Journal*, 53 :185-195, 1954.
- G. Barthole. *Apport de l'électrochimie à l'étude des réacteurs gaz-liquide-solide à lit fixe : hydrodynamique et transfert de matière liquide-solid-Application à l'électrosynthèse*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1983.
- R. Bauer et E.U. Schlünder. Effective radial thermal conductivity of packings in gas flow. part i. convective transport coefficient. *International Chemical Engineering Science*, 18 :181-188, 1978.
- B. Benthack, D. Srinivasan, et D. Bonvin. An optimal operating strategy for fixed-bed bioreactor used in wastewater treatment. *Biotechnol. Bioeng.*, 72 :34-40, 2001.
- G. Biardi et G. Baldi. Three-phase catalytic reactors. *Catalysis Today*, 52 :223-234, 1999.
- J.G. Boelhouwer, H.G. Piepers, et A.A. Drinkenburg. Enlargement of the pulsing flow regime by periodic operation of a trickle-bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 54 :4661-4667, 1999.

- J.G. Boelhouwer, H.G. Piepers, et A.A. Drinkenburg. Particule-liquid heat transfer in trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 56 :1181–1187, 2001a.
- J.G. Boelhouwer, H.G. Piepers, et A.A. Drinkenburg. The induction of pulses in trickle bed by cycling the liquid feed. *Chemical Engineering Science*, 56 :2605–2614, 2001b.
- J.G. Boelhouwer, H.G. Piepers, et A.A. Drinkenburg. Liquid-induced pulsing flow in trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 57 :3387–3399, 2002b.
- D. Borremans. *Opération périodique des réacteurs catalytiques à lit fixe arrosé*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 2003.
- D. Borremans, S. Rode, P. Carré, et G. Wild. The influence of periodic operation on the effective radial thermal conductivity in trickle bed reactors. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 81 :795–801, 2003.
- H.S. Carslaw et J.C. Jaeger. *Conduction of heat in solids*. Oxford University Press, 2nd edition edition, 1959.
- J.C. Charpentier et M. Favier. Some liquid holdup experimental data in trickle-bed reactors for foaming and non-foaming hydrocarbons. *AIChE Journal*, pages 1213–1218, 1975.
- P. Cheng. *Advances in heat transfer*, volume 14, chapter Heat transfer in geothermal systems, pages 1–100. Academic press, 1978.
- T.S. Chou, F.L. Worley, et D. Luss. Local particule-fluid mass transfer fluctuations in mixed-phase cocurrent downflow through a fixed bed in pulsing regime. *Industrial Engineering Chemical Foundation*, 18 :279–283, 1979.
- C.F. Chu et K.M. Ng. Effective thermal conductivity in trickle bed reactors : application of effective medium theory and random walk analysis. *Chemical Engineering Communication*, 37 :127–140, 1985.
- J. Cohen et A.B. Metzner. Wall effects in in laminar flow of fluids through packed beds. *AIChE Journal*, 27 :705–715, 1981.
- D.C. Dankworth, I.G. Kevrekidis, et S. Sundaresan. Time dependent hydrodynamics in multiphase reactors. *Chemical Engineering Science*, 45(08) :2239–2246, 1990.
- T. Daszkowski et G. Eigenberger. A reevaluation of fluid flow, heat transfer and chemical reaction in catalyst filled tubes. *Chemical Engineering Science*, 47 :2245–2250, 1992.
- M. Del Pozo. *Transfert de matière et de chaleur particule-liquide en lit fluidisé gaz-liquide-solide*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1992.
- A. Dharwadkar et N. Sylvester. Liquid-solid mass transfer in a trickle-beds. *AIChE Journal*, 23 :376–378, 1977.

- A. Dixon et L.A. Labua. Wall-to-fluid coefficients for heat and mass transfer, international journal of heat mass transfer. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 28 :879–881, 1985.
- G. Djelveh et R. Bugarel. Transfert thermique dans un réacteur catalytique à lit fixe à température de paroi constante. *Chemical Engineering Journal*, 23 :71–80, 1982.
- M.J. Ellman. *Caractéristiques des réacteurs triphasiques à lit fixe fonctionnant à co-courant vers le bas*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1988.
- M.J. Ellman, N. Midoux, G. Wild, A. Laurent, et J.C. Charpentier. A new, improved liquid hold-up correlation for trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 45 : 1677–1684, 1990.
- A. Gianetto et V. Specchia. Trickle bed reactors : state art and perspectives. *Chemical Engineering Science*, 47 :3197–3213, 1992.
- V. Gnielinski. *Forced convection around immersed bodies Dans Heat exchanger design handbook, Vol 2*. Hemisphere Publishing Corporation(US), 1983.
- S. Goto, J. Levec, et J.M. Smith. Mass transfer in a packed beds with two-phase flow. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, 14 :473–478, 1975.
- W. Gray, G. et K. O'Neill. On the general equations for flow in porous media and their reduction to darcy's law. *Water Resources Research*, 12(2) :148–154, 1976.
- W.G. Gray. A derivation of the equation for multi-phase transport. *Chemical Engineering Science*, 30 :229–233, 1975.
- K. Grosser, R.G. Carbonell, et S. Sundaresan. Onset of pulsing in two-phase cocurrent through packed beds. *AIChE Journal*, 34 :1850, 1988.
- S.N. Gupta, R.N. Chaube, et S.N. Uphadhyay. Fluid-particle heat transfer in fixed and fluidized beds. *Chemical Engineering Science*, 29 :839–843, 1974.
- F. Harlow et A.A. Amsden. Numerical calculation of almost incompressible flow. *Journal of Computational Physics*, 3 :80–93, 1968.
- H. Harlow et A.A. Amsden. A numerical fluid dynamics calculation method for all flow speed. *Journal of Computational Physics*, 8 :197–213, 1971.
- T. Harman. Blueprint for the uintah ice-cfd code single material. Technical report, Los Alamos Laboratory, 2000.
- K. Hashimoto, K. Muroyama, K. Fujiyoshi, et S. Nagata. Effective radial thermal conductivity in cocurrent flow of a gas and a liquid through a packed bed. *International Chemical Engineering*, 16 :720–727, 1976.
- P. Haure, R.R. Hudgins, et P.L. Silveston. Periodic operation of a trickle bed reactor. *AIChE Journal*, 35 :1437–1444, 1989.

- M. Herskowitz et M. Abuelhaija. Liquid-solid mass transfer in a trickle-bed reactor measured by means of a catalytic reaction. *Chemical Engineering Science*, 40 :631–634, 1985.
- J. O. Hinze. *AIChE Journal*, 1 :289, 1955.
- T. Hirose, Y. Mori, et Y. Sato. Liquide-particule mass transfer in a fixed bed with cocurrent ga-liquid downflow. *Chemical Engineering Science*, 9 :220–225, 1999.
- R.A. Holub. *Hydrodynamics of trickle bed reactors*. PhD thesis, Washington University, Sever institute of Technology, Saint Louis, Missouri, 1990.
- R.A. Holub, M.P. Dudukovic, et P.A. Ramachandran. A phenomenological model for pressur drop ,liquid holdup and flow regim transition in gas-liquid trickle flow. *Chemical Engineering Science*, 47 :2343–2348, 1992.
- C. Hsu et P. Cheng. Thermal dispersion in a parous medium. *International Journal Heat Mass Transfer*, 33(8) :1587–1597, 1990.
- I. Iliuta, F. Larachi, et B.P.A. Grandjean. Pressure drop and liquid holdup in a trickle flow reactors : improved ergun constants and slip correlations for the slit model. *Industrial Engineering Chemical Research*, 37 :4542–4550, 1998.
- E.T. Jaynes. The minimum entropy production principle. *Annual review of physics and chemistry*, 31 :579, 1980.
- J. Jiang, M.H. Al-Dahhan, et M.P. Dudukovic. Statistical characterisation of macroscale multiphase flow textures in trickle beds. Chemical Reaction Engineering Laboratory (CREL), 2000a.
- Y. Jiang, M.R. Khadilkar, M.H. Al-Dahhan, et M.P. Dudukovic. Two-phase flow distribution in 2d trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 54 :2409–2419, 1999.
- Y. Jiang, M.R. Khadilkar, M.H. Al-Dahhan, et M.P. Dudukovic. Single phase flow modeling in packed beds : discret cell approach revisited. *Chemical Engineering Science*, 55 :1829–1844, 2000 b.
- B. Kashiwa et R.M. Rauenzahn. A multimaterial formalism. *Numerical Methods in Multiphase Flows*, 185 :149–158, 1994.
- B. Kashiwa, R.M. Rauenzahn, et W.B. Vander Heyden. A cell-centered ice method for multiphase flow simulation. *Numerical Methods in Multiphase Flows*, 185 :159–167, 1994.
- M. Kaviany. *Principles of heat transfer in porous media*. Springer-Verlag, 1st edition, 1991.
- M.R. Khadilkar, M.H. Al-Dahhan, et M.P. Dudukovic. Parametric study of unsteady-flow modulation in trickle bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 54 :2585–2595, 1999.

- B. Khuzhayorov, J.-L. Auriault, et P. Royer. Derivation of macroscopic filtration law for transient linear viscoelastic fluid flow in porous media. *International Journal of Engineering Science*, 38 :487–504, 2000.
- F. Kunii et J.M. Smith. Heat transfer characteristics of porous rocks. *AIChE Journal*, 6 : 71, 1960.
- F. Kuwahara, M. Shiota, et A. Nakayama. A numerical study of interfacial convective heat transfer coefficient in two-energy equation model for convection in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44 :1153–1159, 2001.
- A. Lakota et J. Levec. Solid-liquid mass transfer in packed beds with cocurrent downward two-phase flow. *AIChE Journal*, 36 :1444–1448, 1990.
- A.S. Lamine, L. Gerth, H. Le Gall, et G. Wild. Heat transfer in a packed bed reactor with cocurrent downflow of a gas and liquid. *Chemical Engineering Science*, 51 :3813–3827, 1996.
- R. Lange, J. Hanika, D. Stradiotto, R.R. Hudgins, et P.L. Silveston. Investigations of periodically operated trickle bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 49 :5615–5621, 1994.
- F. Larachi. *Les réacteur triphasiques à lit fixe à co-courant vers le bas et vers le haut de gaz et de liqui*. PhD thesis, INPL, 1991.
- F. Larachi, A. Laurent, N. Midoux, et G. Wild. Experimental study of a trickle-bed reactor operating at high pressure : two-phase pressure drop and liquid saturation. *Chemical Engineering Science*, 46 :1233–1246, 1991.
- R.P. Larkins, R.R. White, et D.W. Jeffrey. Two-phase cocurrent flow in packed beds. *AIChE Journal*, 7 :231–239, 1961.
- M.A. Latifi. *Analyse globale et locale des phénomènes de transfert de matière liquide-solide dans un réacteur à lit fixe fonctionnant à co-courant vers le bas de gaz et de liquide*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1988.
- M.A. Latifi, A. Laurent, G. Wild, et A. Storck. Wall-to-liquid mass transfer in a packed-bed reactor : influence of schmidt number. *Chemical Engineering and Processing*, 33 : 189–192, 1994.
- F. Lesage. *Éxpérimentation des transferts de matière et de quantité de mouvement dans les réacteurs à lit fixe*. PhD thesis, INPL, 2000.
- M.C. Leverett. Capillary behavior in porous solids. *AIME Trans.*, 142 :152–169, 1941.
- R. Lobo, T. Revah, et Viveros-Garcia. An analysis of a trickle-bed bioreactor : carbon disulfide removal. *Biotechnol. Bioeng.*, 63 :98–109, 1999.
- R.W. Lockhart et R.C. Martinelli. proposed correlation of data for isothermal two-phase, two-component flow in pipes. *Chemical Engineering progress*, 45 :39–48, 1949.

- C. Marcandelli. *Hydrodynamique, transfert de chaleur particule-fluide et distribution des phases dans les réacteurs à lit fixe à écoulement à co-courant descendant de gaz et de liquide*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1999.
- C. Marcandelli, G. Wild, A.S. Lamine, et J.R. Bernard. Measurement of local particule-fluid heat transfer coefficient in trickle-bed reactors. *Chemical Engineering Science*, 54 : 4997–5002, 1999.
- T.R. Melli et L.E. Scriven. Theory of two phase cocurrent downflow in networks of passages. *Industrial Engineering Chemical Research*, 30 :951–969, 1991.
- M. Midoux. *Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique*. Lavoisier, 1988.
- N. Midoux, M. Favier, et J.C. Charpentier. Flow pattern, pressure loss and liquid holdup data in gas-liquid downflow packed beds with foaming and nonfoaming hydrocarbons. *Jour. Chem. Eng. Japan*, 9 :350–356, 1976.
- S. Morita et J.M. Smith. Mass transfer and contacting efficiency in a trickle-bed reactor. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 17 :113–120, 1978.
- G.E. Mueller. Radial void fraction distributions in randomly packed fixed beds of uniformly sized spheres in cylindrical containers. *Powder Technology*, 72 :269–275, 1992.
- A. Naderifar. *Etude expérimentale locale et globale du transfert de matière liquide/solide à la paroi d'un réacteur à lit fixe*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1995.
- K.M. Ng. A model for regime transitions in cocurrent down-flow trickle-bed reactors. *AIChE Journal*, 32(01) :115–122, 1986.
- A. Ortiz-Arroyo, F. Larachi, B.P.A. Grandjean, et S. Roy. Cfd modelling and simulation of clogging in packed beds with nonaqueous media. *AIChE Journal*, 48 :1596–1609, 2002.
- R.M. Propp. *Numerical Modeling of a Trickle Bed Reactor*. PhD thesis, University of California at Berkeley, USA, 1998.
- V.G. Rao, M.S. Ananth, et Y.B.G. Varma. Hydrodynamics of two-phase cocurrent down-flow through packed beds. *AIChE Journal*, 29 :467–482, 1983.
- V.G. Rao et A.A.H Drinkenburg. Pressure drop hydrodynamic properties of pulses in two-phase gas-liquid downflow through. *AIChE Journal*, 31 :1059–1068, 1985.
- S. Rode. *Analyse spatio-temporelle des phénomènes hydrodynamiques et de transfert de matière au sein d'un réacteur à lit fixe opérant en écoulement monophasique de liquide ou en co-courant vers le bas de gaz et de liquide; mise au point de la technique des microsondes électrochimiques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1992.

- L.D. Rowe et K.T. Claxton. Heat and mass transfer from a single sphere to fluid through an array. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 43 :317-337, 1965.
- J.A. Ruether, C. Yang, et W. Hayduk. Particle mass transfer during cocurrent downward gas-liquid flow in packed beds. *Industry Engineering Chemical Process Design and Dev.*, 19 :103-107, 1980.
- A.E. Saez et R.G. Carbonell. Hydrodynamics parameters for gas-liquid cocurrent flow in packed beds. *AIChE Journal*, 31(1) :52-62, 1985.
- A.K. Saroha et K.D.P. Nigam. Trickle bed reactors. *Reviews in Chemical Engineering*, 12 :207-347, 1996.
- A.K. Saroha, K.D.P. Nigam, A.K. Sexena, et V.K. Kapoor. Liquid distribution in trickle-bed reactor. *AIChE Journal*, 44 :2044-2052, 1998.
- Y. Sato, T. Hirose, et M. Toda. Pressure loss and liquid holdup in packed bed reactor with cocurrent gas-liquid downflow. *Jour. Chem. Eng. Japan*, 6 :147-152, 1973.
- C.N. Satterfield, M.W. Van Eek, et G.S. Bliss. Liquid-solid mass transfer in packed beds with downward concurrent gas-liquid flow. *AIChE Journal*, 24 :709-717, 1978.
- K. Schnitzlein. Modelling radial dispersion in terms of the local structure of packed beds. *Chemical Engineering Science*, 56 :579-585, 2001.
- P.L. Silveston et J. Hanika. Challenges for the periodic operation of trickle bed catalytic reactors. *Chemical Engineering Science*, 57 :3373-3385, 2002.
- J.W. Smith et D.H. King. Electrochemical wall mass transfer in liquid particulate systems. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 53 :41-47, 1975.
- A. Souadnia. Modélisation et simulation des écoulements gaz/liquide dans un réacteur à lit fixe. Post.doc. INPL, 2000.
- A. Souadnia et M.A. Latifi. Pressure drop and liquid holdup for two phase concurrent flow in packed beds. *Chemical Engineering Science*, 56 :5977-5985, 2001.
- V. Specchia et G. Baldi. Pressure drop and liquid holdup for two phase concurrent flow in packed beds. *Chemical Engineering Science*, 32 :515-523, 1977.
- V. Specchia et G. Baldi. Heat transfer in trickle bed reactors. *Chemical Engineering Communication*, 3 :483-499, 1979.
- V. Specchia, Baldi G., et S. Sicardi. Heat transfer in packed bed reactors with one phase flow. *Chemical Engineering Communication*, 4 :361, 1980.
- J.L. Stephenson et W.E. Stewart. Optical measurements of porosity and fluid motion in packed beds. *Chemical Engineering Science*, 41 :2161-2170, 1986.

- A. Storck et F. Coeuret. *Éléments de génie électrochimique*. Technique et Documentation (Lavoisier), 1984.
- S. Sundaresan. Mathematical modelling of pulsing flow in large trickle beds. *AIChE Journal*, 33 :455-469, 1987.
- G. Tosun. A study of cocurrent downflow of foaming gas-liquid systems in a packed bed : 1. flow regime : search for a generalized flow map. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, 23 : 29-35, 1984.
- N.A. Tsochatzidis, D.M. Giakoumakis, et A.J. Karabelas. Advantages of induced pulsing flow in a trickle bed. Dans *Proceeding of second International Conference on Process Intensification in Practice*, Antwerpen, Belgium, 1997. BHR Group Conference Publication N°28.
- F. Turco, R.R. Hudgins, et P.L. Silveston. Investigations of periodic operation of trickle bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 56 :1429-1434, 2001.
- J.L. Turpin et Huntington. Prediction of pressure drop two-phase, two-component concurrent flow in packed beds. *AIChE Journal*, 13 :1196-1202, 1967.
- K. Vafai et S.J. Kim. Fluid mechanics of the mechanics of the interface region between a porous medium and a fluid layer-an exact solution. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 11 :254-256, 1990.
- K. Vafai et C.L. Tien. Boundary and inertia effects on flow and heat transfer in porous media. *International Journal Heat Mass Transfer*, 24 :195-203, 1981.
- C. Vial. *Apport de la mécanique des fluides à l'étude des contacteurs gaz/liquide*. PhD thesis, INPL, 2000.
- D. Vortmeyer et J. Schuster. Evaluation of steady flow profiles in rectangular and circular packed beds by a variational method. *Chemical Engineering Science*, 38 :1691-1699, 1983.
- G.B. Wallis. *One-dimensional two-phase flow*, chapter 6, pages 122-135. McGraw-Hill Inc., 1969.
- W.J.A. Wammes, J. Middelkamp, et W.J. Huisman. Hydrodynamics in a cocurrent gas-liquide trickle bed at elevated pressures. *AIChE Journal*, 37 :1849, 1991.
- W.J.A. Wammes et K.R. Westerterp. The influence of the reactor pressure on the hydrodynamics in a cocurrent gas-liquide trickle bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 45 :2247-2254, 1990.
- V.W. Weekman et J.E. Myers. Heat transfer characteristics of cocurrent gas-liquid flow in packed beds. *AIChE Journal*, 11 :13-17, 1965.
- S. Whitaker. Diffusion and dispersion in porous media. *AIChE Journal*, 13 :420-427, 1967.

-
- S. Whitaker. Forced convection heat transfer correlations for flow in pipes, past flat plates, single cylinders, single spheres and flow in packed beds and tube bundles. *AIChE Journal*, 18 :361–371, 1972.
- S. Whitaker. The transport equations for multi-phase systems. *Chemical Engineering Science*, 28 :139–147, 1973.
- Q. Xiao, Z.M. Cheng, Z.X. Jiang, A.M. Anter, et W.K. Yuan. Hydrodynamic behavior of a trickle bed reactor under 'forced' pulsing flow. *Chemical Engineering Science*, 56 : 1189–1195, 2001.
- F. Yin, A. Afacan, K. Nandakumar, et T.K. Chuang. Liquid holdup distribution in packed columns : gamma ray tomography and cfd simulation. *Chemical Engineering and Processing*, 41 :473–483, 2002.
- J.P. Zehner et E.U. Schlünder. Wärmeleitfähigkeit von schüttungen bei mässigen temperaturen. *Chemical Engineering Techn.*, 42 :933–941, 1970.
- H. Zoghلامي. *Etude des transferts et écoulements réactifs en milieu poreux : application à un stockage de solides thermiquement instables*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France, 1999.

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Daniel SCHWEICH, Directeur de Recherche, LGP, CNRS, Villeurbanne

Monsieur Pierre MARCHOT, Professeur, DGC, Liège, Belgique

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur SOLTANA Farouk

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Simulation de l'hydrodynamique et des transferts de matière et de chaleur dans les
réacteurs à lit fixe"

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANCEUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

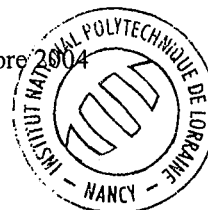
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Génie des procédés »

Fait à Vandoeuvre, le 30 septembre 2004

Le Président de l'I.N.P.L.,

L. SCHUFFENECKER



Pour le Président
Le Vice-Président,

J.-Y. COUJARD



Résumé

Ce travail est consacré à la modélisation et simulation de l'hydrodynamique et des transferts de matière liquide/paroi et de chaleur dans les réacteurs à lit fixe et à écoulement monophasique de liquide et diphasique (gaz-liquide) à co-courant vers le bas (RCLFA).

En modélisation, l'approche utilisée est du type "bilans de populations", développée par Kashiwa et Rauenzahn (1994). Dans le but de fermer le système d'équations, plusieurs modèles phénoménologiques d'interactions fluides/solide et gaz/liquide sont utilisés.

Dans le cas des réacteurs gaz/liquide à lit fixe et à écoulement à co-courant vers le bas, les simulations de l'hydrodynamique et du transfert de matière liquide/paroi sont effectuées en régime ruisselant et dispersé.

En plus, de l'étude de ces deux régimes, la simulation du régime pulsé induit est traitée.

Toutes les simulations ont été réalisées à l'aide du code de calcul CFDlib.

Les résultats obtenus sont comparés aux mesures expérimentales précédemment effectuées au laboratoire, et aux corrélations de la littérature.

Enfin, en ce qui concerne le transfert de chaleur, la simulation d'un lit fixe et à écoulement monophasique est abordée notamment à l'aide des modèles à une et à deux températures. Ces études ont donné lieu à des résultats encourageants, qui vont servir de base à de prochaines études dans le domaine des écoulements en lit fixe avec réaction chimique.

Mots-clés : Réacteurs à lit fixe, écoulement monophasique, écoulement gaz/liquide, MFN, hydrodynamique, transfert de matière et de chaleur

Abstract

This work deals with modelling and simulation of hydrodynamics, liquid-to-wall mass and heat transfer in fixed bed reactors with both single phase liquid and co-current gas/liquid down flow (trickle-beds).

In modelling, the averaged statistical approach developed by Kashiwa and Rauenzahn (1994) is adopted through the use of the code CFDlib. Different phenomenological relations of fluids/solid and gas/liquid interactions are used to close the process model equations.

Simulations of hydrodynamics and liquid-to-wall mass transfer are carried out in trickling and dispersed flow regimes. In addition to these two regimes, the simulation of induced pulsing flow is investigated. The results are compared to the experimental measurements previously obtained in our laboratory in trickle-bed reactors and to appropriate correlations of literature.

Concerning heat transfer, only single phase liquid down flow is considered. The simulation is based on both homogenous and heterogeneous models.

KeyWords : Trickle-beds, single phase liquid flow, CFD, hydrodynamics, liquid-to-wall mass transfer, heat transfer